

PCT

世界知的所有権機関
国際事務局

特許協力会に基づいて公開された国際出願



(51) 国際特許分類6 H05B 33/10, 33/14, 33/22	A1	(11) 国際公開番号 WO99/20080
		(43) 国際公開日 1999年4月22日(22.04.99)
(21) 国際出願番号 PCT/JP97/03721		(81) 指定国 CN, JP, KR, US, 欧州特許 (AT, BE, CH, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE).
(22) 国際出願日 1997年10月15日(15.10.97)		添付公開書類 国際調査報告書

(71) 出願人 (米国を除くすべての指定国について)
東レ株式会社(TORAY INDUSTRIES, INC.)[JP/JP]
〒103 東京都中央区日本橋室町2丁目2番1号 Tokyo, (JP)

(72) 発明者 ; および

(75) 発明者 / 出願人 (米国についてのみ)
姫島義夫(HIMESHIMA, Yoshio)[JP/JP]
〒520 滋賀県大津市園山2丁目15番B1-11 Shiga, (JP)

藤森茂雄(FUJIMORI, Shigeo)[JP/JP]
〒520 滋賀県大津市園山2丁目10番A7-46 Shiga, (JP)

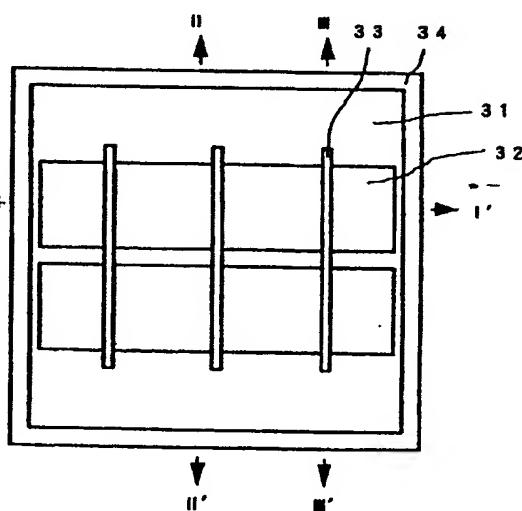
小濱 亨(KOHAMA, Akira)[JP/JP]
〒520 滋賀県大津市園山2丁目5番A11-41 Shiga, (JP)

(54) Title: PROCESS FOR MANUFACTURING ORGANIC ELECTROLUMINESCENT DEVICE

(54)発明の名称 有機電界発光装置の製造方法

(57) Abstract

A process for manufacturing an organic electroluminescent device which is provided with a first electrode formed on a substrate, a thin film layer which contains at least one luminous layer composed of an organic compound and formed on the first electrode, and a second electrode formed on the thin film layer and has a plurality of luminous areas on the substrate, which process comprises the step of forming a spacer having a height which is partially larger than the thickness of the thin film layer on the substrate and the step of patterning a shadow mask having reinforcing lines formed so that the lines can cross openings by vapor-depositing a deposit in a state where the shadow mask is closely adhered to the spacer layer. This process makes it possible to form a fine pattern with high accuracy under a wide vapor deposition condition without deteriorating the characteristics of an organic electroluminescent element and, in addition, to realize a high stability through relative simple steps without limiting the structure of the luminescent device.



基板上に形成された第一電極と、少なくとも有機化合物からなる発光層を含み前記第一電極上に形成された薄膜層と、前記薄膜層上に形成された複数の第二電極とを含み、前記基板上に複数の発光領域を有する有機電界発光装置の製造方法であって、少なくとも一部分が前記薄膜層の厚さを上回る高さをもつスペーサーを前記基板上に形成する工程と、開口部を横切るようにして形成された補強線を有するシャドーマスクを前記スペーサー層に密着させた状態で蒸着物を蒸着せしめることによりパターニングする工程とを含むことを特徴とする有機電界発光装置の製造方法。

有機電界発光素子の特性を劣化させることなく幅広い蒸着条件下で高精度な微細パターニングが可能であり、しかも、発光装置の構造を限定することなく比較的簡略な工程で高い安定性を実現することが可能である。

PCTに基づいて公開される国際出願のパンフレット第一頁に掲載されたPCT加盟国を同定するために使用されるコード(参考情報)

AE アラブ首長国連邦	ES スペイン	LI リヒテンシュタイン	SG シンガポール
AM アルバニア	FI フィンランド	LK スリ・ランカ	SI スロヴェニア
AL アルメニア	FR フランス	LR リベリア	SK スロヴァキア
AT オーストリア	GA ガボン	LS レソト	SL シエラ・レオネ
AU オーストラリア	GB 英国	LT リトアニア	SN セネガル
AZ アゼルバイジャン	GD グレナダ	LU ルクセンブルグ	SZ スワジ兰ド
BA ボスニア・ヘルツェゴビナ	GE グルジア	LV ラトヴィア	TD チャード
BB ベルバトス	GH ガーナ	MC モナコ	TG トーゴー
BE ベルギー	GM ガンビア	MD モルドヴァ	TJ タジキスタン
BF ブルキナ・ファソ	GN ギニア	MG マダガスカル	TM トルクメニスタン
BG ブルガリア	GW ギニア・ビサオ	MK マケドニア旧ユーゴスラヴィア	TR トルコ
BJ ベナン	GR ギリシャ	共和国	TT トリニダッド・トバゴ
BR ブラジル	HR クロアチア	ML マリ	UA ウクライナ
BY ベラルーシ	HU ハンガリー	MN モンゴル	UG ウガンダ
CA カナダ	ID インドネシア	MR モーリタニア	US 米国
CF 中央アフリカ	IE アイルランド	MW マラウイ	UZ ウズベキスタン
CG コンゴー	IL イスラエル	MX メキシコ	VN ヴィエトナム
CH スイス	IN インド	NE ニジエール	YU ヨゴスラビア
CI コートジボアール	IS アイスランド	NL オランダ	ZA 南アフリカ共和国
CM カメルーン	IT イタリア	NO ノールウェー	ZW ジンバブエ
CN 中国	JP 日本	NZ ニュー・ジーランド	
CU キューバ	KE ケニア	PL ポーランド	
CY キプロス	KG キルギスタン	PT ポルトガル	
CZ チェコ	KP 北朝鮮	RO ルーマニア	
DE ドイツ	KR 韓国	RU ロシア	
DK デンマーク	KZ カザフスタン	SD スーダン	
EE エストニア	LC セントルシア	SE スウェーデン	

明細書

有機電界発光装置の製造方法

技術分野

本発明は、表示素子、フラットパネルディスプレイ、バックライト、インテリアなどの分野に利用可能な、同一基板上に有機電界発光素子による複数の発光領域を備えた有機電界発光装置の製造方法に関するものである。

背景技術

近年、新しい発光素子として有機電界発光素子が注目されている。本素子は陽極から注入された正孔と陰極から注入された電子とが両極に挟まれた有機発光層内で再結合することにより発光するものであり、低電圧で高輝度に発光することがコダック社の C. W. Tang らによって初めて示された (Appl. Phys. Lett. 51 (12) 21, p. 913, 1987)。

図 37 は有機電界発光素子の代表的な構造を示す断面図である。ガラス基板 1 に形成された透明な第一電極 (陽極) 2 上に正孔輸送層 5、有機発光層 6、第二電極 (陰極) 8 が積層され、駆動源 9 による駆動で生じた発光は第一電極およびガラス基板を通じて外部に取り出される。このような有機電界発光素子では薄型、低電圧駆動下での高輝度発光や有機発光材料を選択することによる多色発光が可能であり、表示素子やディスプレイなどの発光装置に応用する検討が盛んである。

このような場合、例えば、図 1 ~ 3 に示すような単純マトリクス型カラーディスプレイにおいては少なくとも有機発光層と第二電極

を、アクティブマトリクス型カラーディスプレイにおいても少なくとも有機発光層を高精度にパターニングする技術が要求される。

従来このような微細パターニングにはウェットプロセスであるフォトリソ法が用いられる。特開平6-234969号公報では有機材料を工夫することによりフォトリソ法が適用可能な素子を得る技術が開示されている。

ウェットプロセスを用いない第二電極のパターニング方法として、特開平5-275172号公報や特開平8-315981号公報に隔壁法の技術が開示されている。特開平5-275172号公報の技術は、基板上に間隔をあけて配置された隔壁を形成し、この基板に対して斜め方向から電極材料を蒸着するものである。また、特開平8-315981号公報の技術は、基板上にオーバーハング部を有する隔壁を形成し、この基板に対して垂直方向を中心とした角度範囲で電極材料を蒸着するものである。

また、従来のマスク法はウェットプロセスを用いない一般的なパターニング方法である。この方法は基板前方にシャドーマスクを配置し、開口部を介して蒸着物を蒸着することでパターニングを実現するものである。

マスク法による微細パターニング方法として、特開平9-115672号公報に単層構造をもつシャドーマスクを使用するマスク法の技術が開示されている。この方法では、開口部幅よりマスク部分の方が広いシャドーマスクを使用して発光色ごとに有機薄膜層と第二電極とをパターニングすることにより、実用ピッチ単純マトリクス型カラーディスプレイの作製を実現している。

一方、有機電界発光装置の製造方法には直接関係しないが、特公昭63-38421号公報には、積層構造をもつシャドーマスクを

使用するマスク法による配線パターンの形成技術が開示されている。この方法は、少なくとも一方が磁性体からなるメッシュとパターンが形成された箔との二層から構成されたシャドーマスクを、マグネットによって基板に密着させて蒸着するものである。メッシュによって開口部の変形が抑制されるので、環状の回路部分や曲がりくねった細い回路部分など複雑な配線パターンを形成することが可能である。

発明の開示

しかしながら、前述の従来方法には以下のような問題があった。

前記フォトリソ法では、一般的に有機電界発光素子を構成する有機薄膜層は水分や有機溶媒、薬液に対する耐久性に乏しいので、有機電界発光素子の性能を著しく劣化させてしまう。また、ウェットプロセスの適用可能な有機電界発光素子を得るためにには、用いる材料が限定されるという問題があった。

前記隔壁法では、隔壁によって作り出される蒸着物の影を利用してパターニングを実現するので、多様な蒸着角度が存在する条件や蒸着物の回り込み量の多い条件では高精度なパターニングができない。このため、基板面積の大型化や蒸着速度の高速化、パターニングの高精度化に対して問題があった。また、蒸着物の影に対応するデットスペースとよばれる第二電極の存在しない領域が有機薄膜層上に存在するので、そこからの水分などの侵入により有機電界発光素子が劣化しやすい傾向にあった。さらに、断面アスペクト比の大きな隔壁やオーバーハング部を有する特殊な形状の隔壁を基板全面において安定に形成することは容易ではなかった。

従来のマスク法では、基板とシャドーマスクとの密着不良により

蒸着物の回り込みが発生してしまう。特に、ストライプ状第二電極パターン形成などのために開口部に比べてマスク部分が極端に細いシャドーマスクを使用する場合には、シャドーマスクの強度不足により開口部形状が変形してしまう。このため、ディスプレイ用途などで要求されるサブミリメートルレベルの微細パターニングを高精度に実現することは困難であった。

前記単層構造をもつシャドーマスクを使用するマスク法では、マスク部分が比較的広いとはいえ開口部形状の変形の問題は解決されておらず、パターニングの高精度化には依然問題があった。また、有機薄膜層と第二電極とが同一の平面形状で積層されるために、第二電極の形成に複数回の電極材料蒸着工程を必要とするだけでなく、第二電極をデータラインとして機能させるディスプレイ構造にしか適用できないという問題があった。

前記積層構造をもつシャドーマスクを使用するマスク法では、従来の配線パターンは一般的にミリメートルレベルのサイズで形成されており、この方法をそのままサブミリメートルレベルの微細パターンの形成に適用することはできなかった。また、凹凸の大きなメッシュ上にパターンを形成する箔を付与して作製されたシャドーマスクを用いているので、シャドーマスクの平面性や精度が十分でなく、微細パターンの高精度化が難しいという問題があった。さらに、この方法ではシャドーマスクをマグネットによって強制的に基板に密着させるが、セラミック基板などに比べると非常に柔らかい有機薄膜層上に第二電極を形成するような場合には、シャドーマスクが有機薄膜層を容易に傷つけてしまう。このため、第一電極と第二電極との短絡など望ましくない事態が起こるので、この方法を有機電界発光装置におけるパターニングに適用することはできなかった。

上記のとおり、従来技術においては有機電界発光装置の製造に必要な微細パターニングを有機薄膜層に損傷を与えることなく高精度に、かつ、安定性よく実現することは困難であった。

本発明はかかる問題を解決し、有機電界発光素子の特性を劣化させることなく幅広い蒸着条件下で高精度な微細パターニングが可能であり、しかも、発光装置の構造を限定することなく比較的簡略な工程で高い安定性を実現することが可能な有機電界発光装置の製造方法を提供することが目的である。

図面の簡単な説明

- 図 1 本発明によって製造された有機電界発光装置の一例を示す平面図。
- 図 2 図 1 の I I' 断面図。
- 図 3 図 1 の II II' 断面図。
- 図 4 本発明において使用されるシャドーマスクの一例を示す平面図。
- 図 5 図 4 の I I' 断面図。
- 図 6 本発明における第二電極パターニング方法の一例を説明する I I' 断面図。
- 図 7 本発明における第二電極パターニング方法の一例を説明する II II' 断面図（図 6 の側面図）。
- 図 8 第一電極パターンの一例を示す平面図。
- 図 9 本発明において形成されたスペーサーの一例を示す平面図。
- 図 10 本発明によって製造された有機電界発光装置の別の例を示す平面図。
- 図 11 図 10 の I I' 断面図。

- 図 1 2 図 1 0 の II II' 断面図。
- 図 1 3 本発明によって製造された有機電界発光装置の別の一例を示す平面図。
- 図 1 4 図 1 3 の I I' 断面図。
- 図 1 5 図 1 3 の II II' 断面図。
- 図 1 6 正孔輸送層の形成方法を説明する I I' 断面図。
- 図 1 7 本発明において使用されるシャドーマスクの別の一例を示す平面図。
- 図 1 8 本発明における発光層パターニング方法の一例を説明する I I' 断面図。
- 図 1 9 本発明における発光層パターニング方法の一例を説明する II II' 断面図（図 1 8 の側面図）。
- 図 2 0 本発明においてパターニングされた発光層の一例を示す平面図。
- 図 2 1 電子輸送層の形成方法を説明する I I' 断面図。
- 図 2 2 本発明においてパターニングされた別の電子輸送層の一例を示す I I' 断面図。
- 図 2 3 図 4 の III III' 断面図。
- 図 2 4 本発明において使用されるシャドーマスクの別の一例を示す III III' 断面図。
- 図 2 5 本発明において使用されるシャドーマスクの別の一例を示す III III' 断面図。
- 図 2 6 本発明において使用されるシャドーマスクの別の一例を示す平面図。
- 図 2 7 本発明における第二電極パターニング方法の別の一例を説明する I I' 断面図。

- 図 2 8 本発明における第二電極パターニング方法の別の一例を説明する II II' 断面図（図 2 7 の側面図）。
- 図 2 9 本発明において使用されるクッション部分を有するシャドーマスクの一例を示す III III' 断面図。
- 図 3 0 実施例 1 で使用した第二電極パターニング用のシャドーマスクを示す平面図。
- 図 3 1 図 3 0 の I I' 断面図。
- 図 3 2 実施例 1 で製造した有機電界発光装置を示す平面図。
- 図 3 3 図 3 2 の I I' 断面図。
- 図 3 4 図 3 2 の II II' 断面図。
- 図 3 5 実施例で使用した発光層パターニング用のシャドーマスクの製造方法を説明する平面図。
- 図 3 6 実施例で使用した第二電極パターニング用のシャドーマスクの製造方法を説明する断面図。
- 図 3 7 従来の有機電界発光素子の一例を示す断面図。

発明を実施する場合の最良の形態

これらの目的は、以下の本発明によって達成される。
すなわち本発明は、基板上に形成された第一電極と、少なくとも有機化合物からなる発光層を含み前記第一電極上に形成された薄膜層と、前記薄膜層上に形成された複数の第二電極とを含み、前記基板上に複数の発光領域を有する有機電界発光装置の製造方法であって、少なくとも一部分が前記薄膜層の厚さを上回る高さをもつスペーサーを前記基板上に形成する工程と、開口部を横切るようにして形成された補強線を有するシャドーマスクを前記スペーサー層に密着させた状態で蒸着物を蒸着せしめることによりパターニングする

工程とを含むことを特徴とする有機電界発光装置の製造方法である。

本発明における有機電界発光装置とは、同一基板上に有機電界発光素子による複数の発光領域を備えたものである。以下では本発明の製造方法により製造された有機電界発光装置を説明する。ただし、本発明の製造方法は例示された形式や構造をもつ有機電界発光装置の製造方法に限定されるわけではなく、セグメント型、単純マトリクス型、アクティブマトリクス型などの形式やカラー、モノクロなどの発光色数を問わず任意の構造の有機電界発光装置に適用することが可能である。

本発明の製造方法によって製造された有機電界発光装置の一例を図1～3に示す。基板1上に形成されたストライプ状の第一電極2と、各第一電極上にパターニングされた有機化合物からなる発光層6を含む薄膜層10と、第一電極に対して直交するストライプ状の第二電極8とが積層されており、両電極の交点に有機電界発光素子構造をもつ複数の発光領域が形成されている。各発光領域は発光層に異なる材料を用いることで赤(R)、緑(G)、青(B)に発光するので、この単純マトリクス型発光装置を線順次駆動することにより画像などをカラー表示することが可能である。また、基板上には薄膜層の厚さを上回る高さをもつスペーサー4が形成されている。

第一および第二電極は有機電界発光素子の発光に十分な電流が供給できる導電性をもてばよいが、光を取り出すために少なくとも一方の電極が透明であることが好ましい。

透明な電極は可視光線透過率が30%以上あれば使用に大きな障害はないが、理想的には100%に近い方が好ましい。基本的には可視光全域において同程度の透過率を持つことが好ましいが、発光色を変化させたい場合には積極的に光吸収性を付与させることも可

能である。このような場合にはカラーフィルターや干渉フィルターを用いて変色させる方法が技術的には容易である。透明電極材料としては、インジウム、錫、金、銀、亜鉛、アルミニウム、クロム、ニッケル、酸素、窒素、水素、アルゴン、炭素から選ばれる少なくとも一種類の元素からなることが多いが、ヨウ化銅、硫化銅などの無機導電性物質、ポリチオフェン、ポリピロール、ポリアニリンなどの導電性ポリマーを用いることも可能であり、特に限定されるものでない。

好ましい第一電極材料の例としては、透明基板上に形成された酸化錫、酸化亜鉛、酸化インジウム、酸化錫インジウム（ITO）などを挙げることができる。パターニングを行うディスプレイ用途などでは、加工性に優れたITOを第一電極に用いることが特に好ましい。導電性向上のためにITOには少量の銀や金などの金属が含まれていてもよく、また、錫、金、銀、亜鉛、インジウム、アルミニウム、クロム、ニッケルをITOのガイド電極として使用することも可能である。とりわけクロムはブラックマトリックスとガイド電極との両方の機能を持たせることができるので好ましいガイド電極材料である。有機電界発光装置の消費電力の観点からITOの抵抗は低いことが好ましい。 $300\Omega/\square$ 以下のITO基板であれば第一電極として機能するが、現在では $10\Omega/\square$ 程度のITO基板の供給も容易になっていることから、低抵抗品を使用することも可能である。ITOの厚みは抵抗値に合わせて任意に選択できるが、通常は厚みが $100\sim300\text{ nm}$ のITOを用いることが多い。透明基板の材質は特に限定されず、ポリアクリレート、ポリカーボネート、ポリエステル、ポリイミド、アラミドからなるプラスチック板やフィルムを用いることができるが、好ましい例としてガラス板

を挙げることができる。ソーダライムガラス、無アルカリガラスなどが用いられ、また厚みも機械的強度を保つのに十分な厚みがあればよいので0.5 mm以上あれば十分である。ガラスの材質については、ガラスからの溶出イオンが少ない方がよいので無アルカリガラスの方が好ましいが、二酸化ケイ素などのバリアコートを施したソーダライムガラスも市販されているのでこれを使用できる。ITOの形成方法は、電子ビーム蒸着、スパッタリング蒸着、化学反応法など特に制限されるものではない。

第二電極材料についても特に限定されないが、第一電極としてITOを使用する場合にはITOが一般的に陽極として機能するために、第二電極には有機電界発光素子に電子を効率良く注入できる陰極としての機能が求められる。したがって、第二電極材料としてはアルカリ金属などの低仕事関数金属を使用することも可能であるが、電極の安定性を考えると、白金、金、銀、銅、鉄、錫、アルミニウム、マグネシウム、インジウムなどの金属、またはこれら金属と低仕事関数金属との合金などを使用することが好ましい。また、あらかじめ有機電界発光素子の薄膜層に低仕事関数金属を微量にドーピングしたり、薄膜層上にフッ化リチウムなど金属塩の層を薄く形成し、その後に比較的安定な金属を第二電極として形成することで、電子注入効率を高く保ちながら安定な電極を得ることもできる。第二電極の形成方法も抵抗加熱蒸着、電子ビーム蒸着、スパッタリング蒸着、イオンプレーティング法などドライプロセスであれば特に限定されない。

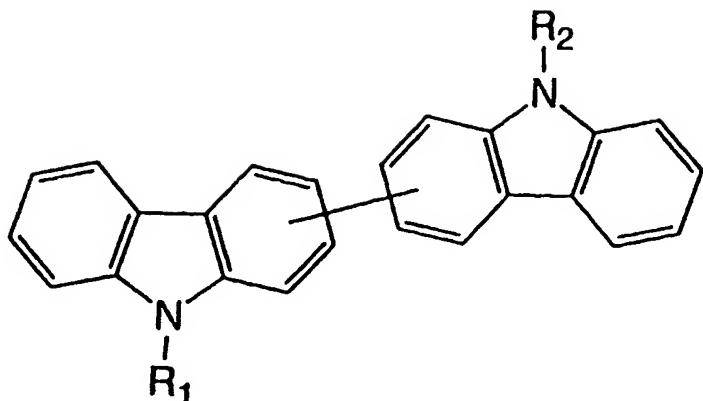
有機電界発光素子に含まれる薄膜層としては、1) 正孔輸送層／発光層、2) 正孔輸送層／発光層／電子輸送層、3) 発光層／電子輸送層、そして、4) 上記の層構成物質を一層に混合した形態の発

光層、のいずれであってもよい。すなわち、素子構成として有機化合物からなる発光層が存在していれば、上記1)～3)の多層積層構造の他に4)のように発光材料単独または発光材料と正孔輸送材料や電子輸送材料を含む発光層を一層設けるだけでもよい。

正孔輸送層は正孔輸送材料単独で、あるいは正孔輸送材料と高分子結着剤により形成される。正孔輸送材料としては、低分子化合物ではN,N'-ジフェニル-N,N'-ジ(3-メチルフェニル)-1,1'-ジフェニル-4,4'-ジアミン(TPD)やN,N'-ジフェニル-N,N'-ジナフチル-1,1'-ジフェニル-4,4'-ジアミン(NPD)などに代表されるトリフェニルアミン類、N-イソプロピルカルバゾール、ピラゾリン誘導体、スチルベン系化合物、ヒドロゾン系化合物、オキサジアゾール誘導体やフタロシアニン誘導体に代表される複素環化合物などを、またポリマー系では前記低分子化合物を側鎖に有するポリカーボネートやスチレン誘導体、ポリビニルカルバゾール、ポリシランなどを好ましい例として挙げることができる。

単純マトリクス型発光装置の用途では各有機電界発光素子の発光時間は短く、パルス電流を流することで瞬間に高輝度に発光させることが必要になる。このような場合に正孔輸送材料には優れた正孔輸送特性と安定した薄膜形成能だけでなく、正孔輸送層中の電子の漏れによる発光効率低下を防ぐために良好な電子ブロッキング特性が要求される。上記特性をバランスよく満足させるために、本発明の製造方法においては下記に示すビスカルバゾリル骨格を含む有機化合物からなる有機層を形成する工程を含むことが特に好ましい。

化学式



R₁、R₂は、水素、アルキル、ハロゲン、アリール、アラルキルおよびシクロアルキルの中から選ばれる。また、カルバゾリル骨格にはアルキル、アリール、アラルキル、カルバゾリル、置換カルバゾリル、ハロゲン、アルコキシ、ジアルキルアミノおよびトリアルキルシリル基から選ばれる置換基が1つ以上連結されていてよい。

発光材料としては、低分子化合物では以前から発光体として知られていたアントラセン誘導体、ピレン誘導体、8-ヒドロキシキノリンアルミニウム誘導体、ビスチリルアントラセン誘導体、テトラフェニルブタジエン誘導体、クマリン誘導体、オキサジアゾール誘導体、ジスチリルベンゼン誘導体、ピロロピリジン誘導体、ペリノン誘導体、シクロペンタジエン誘導体、オキサジアゾール誘導体、チアジアゾロピリジン誘導体などを、ポリマー系ではポリフェニレンビニレン誘導体、ポリパラフェニレン誘導体、ポリチオフェン誘導体などを好ましい例として挙げることができる。また、発光層にドーピングするドーパントとしては、ルブレン、キナクリドン誘導体、フェノキサゾン誘導体、DCM、ペリノン誘導体、ペリレン誘導体、クマリン誘導体、ジアザインダセン誘導体などを好ましい例

として挙げることができる。

電子輸送材料には陰極から注入された電子を効率良く輸送することが要求されるので、大きな電子親和力、大きな電子移動度、安定した薄膜形成能を有することが好ましい。このような特性を満足させる材料として、8-ヒドロキシキノリンアルミニウム誘導体、ヒドロキシベンゾキノリンベリリウム誘導体、2-(4-ビフェニル)-5-(4-t-ブチルフェニル)-1,3,4-オキサジアゾール(t-BuPBD)や1,3-ビス(4-t-ブチルフェニル-1,3,4-オキサジゾリル)ビフェニレン(OD-XD-1)、1,3-ビス(4-t-ブチルフェニル-1,3,4-オキサジゾリル)フェニレン(OD-XD-7)などのオキサジアゾール誘導体、トリアゾール誘導体、フェナントロリン誘導体などを好ましい例として挙げることができる。

上記の正孔輸送層、発光層、電子輸送層に用いられる材料は単独で各層を形成することができるが、高分子結着剤としてポリ塩化ビニル、ポリカーボネート、ポリスチレン、ポリ(N-ビニルカルバゾール)、ポリメチルメタクリレート、ポリブチルメタクリレート、ポリエステル、ポリスルフォン、ポリフェニレンオキサイド、ポリブタジエン、炭化水素樹脂、ケトン樹脂、フェノキシ樹脂、ポリサルファン、ポリアミド、エチルセルロース、酢酸ビニル、ABS樹脂、ポリウレタン樹脂などの溶剤可溶性樹脂や、フェノール樹脂、キシレン樹脂、石油樹脂、ユリア樹脂、メラミン樹脂、不飽和ポリエステル樹脂、アルキド樹脂、エポキシ樹脂、シリコーン樹脂などの硬化性樹脂に分散させて用いることもできる。

上記正孔輸送層、発光層、電子輸送層などの形成方法は、抵抗加熱蒸着、電子ビーム蒸着、スペッタリング蒸着法など特に限定され

ないが、一般的には抵抗加熱蒸着、電子ビーム蒸着などの方法が特性面で好ましい。有機層の厚みはその抵抗値にも関係するので限定できないが、実用的には 10 ~ 1000 nm の間から選ばれる。

また、正孔輸送層や電子輸送層の全体、もしくは一部分に無機材料を用いることも可能である。好ましい例として炭化ケイ素、窒化ガリウム、セレン化亜鉛、硫化亜鉛系の無機半導体材料を挙げることができる。

本発明の製造方法は、少なくとも一部分が薄膜層の厚さを上回る高さをもつスペーサーを基板上に形成する工程と、開口部を横切るようにして形成された補強線を有するシャドーマスクをスペーサー層に密着させた状態で蒸着物を蒸着せしめることによりパターニングする工程とを含むことを特徴とする。例えば、図 1 の II-II' 断面図である図 3 に示すように、薄膜層 10 の厚さを上回る高さをもつようにスペーサー 4 を基板 1 上に形成しておく。薄膜層などの形成の後に、図 4 および図 4 の I-I' 断面図である図 5 に示すような補強線 33 を有するシャドーマスクを、前記スペーサーに密着させた状態で、図 6 および図 6 の側面図である図 7 に示すように蒸着物を蒸着せしめることにより第二電極 8 をパターニングすることができる。この際、シャドーマスクはスペーサーに密着するので薄膜層を傷つけることを防止できる。また、このシャドーマスクのマスク部分 31 の一方の面 35 と補強線との間には隙間 36 が存在するので、蒸着物をこの隙間に回り込んで蒸着せしめることにより、第二電極を補強線によって分断されることなくパターニングすることができる。以下では、この有機電界発光装置の製造方法を例にして本発明を詳しく説明する。

まず、基板 1 上の第一電極 2 を図 8 に示す形状にパターニングす

る。パターニング方法としては公知の技術を用いればよく特に限定されない。したがって、本発明の補強線を有するシャドーマスクを用いたパターニング方法により基板上に第一電極を形成してもよいが、一般的には基板全面に形成された第一電極をフォトリソ法によってエッチングすることでパターニングすることができる。第一電極のパターン形状は特に限定されず、用途に応じて最適パターンを選択すればよい。また、第一電極のパターニングは必要に応じて行えばよく、例えばセグメント型発光装置において第一電極が共通電極となる場合には、第一電極をパターニングせずに用いてもよい。

次に、図9に示すように、薄膜層の厚さを上回る高さをもつスペーサー4を後から形成される第二電極間に位置するように形成する。本発明の製造方法では、基板とシャドーマスクとが密着した際に、シャドーマスクが基板上に形成された薄膜層を傷つけることを防ぐため、基板上に、少なくとも一部分が薄膜層の厚さを上回る高さをもつスペーサーを形成する工程が必要である。スペーサーの高さについては特に限定されないが、スペーサーによってシャドーマスクと基板との間に形成される隙間に蒸着物が回り込むことでおこるパターン精度の悪化を考慮すると、通常は0.5～100μmの範囲で形成される。

スペーサーを形成する位置は特に限定されないが、発光面積の口スを最小とするように有機電界発光装置における非発光領域を中心にスペーサーを配置することが好ましい。スペーサーの構造は特に限定されるものではなく、一層によって形成されていても、複数の層を積層して形成されていてもよい。例えば、図10～12に示すように、比較的膜厚の薄い第一のスペーサー3が第一電極2の間に、それに直交するように薄膜層の厚さを上回る高さをもつ第二のスペ

ーサー 4 が第二電極 8 の間に形成されていてもよい。また、図 13 ~ 15 に示すように、第一のスペーサー 3 を第一電極の端部を被覆するように形成して層間絶縁層としての機能を付加したり、第一のスペーサーをマトリクス状に形成し、その一部分に重ね合わせて第二のスペーサー 4 を形成することも可能である。また、複数のドット状スペーサーを基板上に配置させることも可能である。スペーサーの断面形状は特に限定はされない。

スペーサーは第一電極に接する状態で形成されることが多いために、十分な電気絶縁性を有することが好ましい。導電性のスペーサーを用いることもできるが、その場合は電極間の短絡を防止するための電気絶縁性部分を形成すればよい。スペーサー材料としては公知の材料を用いることが可能であり、無機物では酸化ケイ素をはじめとする酸化物材料、ガラス材料、セラミックス材料などを、有機物ではポリビニル系、ポリイミド系、ポリスチレン系、アクリル系、ノボラック系、シリコーン系などのポリマー系樹脂材料を好ましい例として挙げることができる。さらに、スペーサーの全体、もしくは基板あるいは第一電極と接する部分を黒色化することで、有機電界発光装置の表示コントラスト向上に寄与するブラックマトリクス的な機能をスペーサーに付加することもできる。このような場合のスペーサー材料としては、無機物ではケイ素、砒化ガリウム、三酸化マンガン、酸化チタンや酸化クロムと金属クロムとの積層膜などを、有機物では上記樹脂材料に、電気絶縁性を高めるために表面処理の施されたカーボンブラック系、フタロシアニン系、アントラキノン系、モノアゾ系、ジスアゾ系、金属錯塩型モノアゾ系、トリアリルメタン系、アニリン系などの公知の顔料や染料、あるいは上記無機材料粉末を混合した材料を好ましい例として挙げることができ

る。

スペーサー層の形成方法としては、無機材料を用いる場合には抵抗加熱蒸着、電子ビーム蒸着、スパッタリング蒸着法などのドライプロセスを利用する方法が、有機材料を用いる場合にはスピントロート、スリットダイコート、ディップコート法などのウェットプロセスを利用する方法が挙げられるが、特に限定されるものではない。

スペーサーのパターニング方法は特に限定されないが、第一電極のパターニング工程後に基板全面にスペーサー層を形成し、公知のフォトリソ法を用いてパターニングする方法が工程的に容易である。フォトレジストを使用したエッチング法あるいはリフトオフ法によってスペーサーをパターニングしてもよいし、例示した上記樹脂材料に感光性を付加させた感光性スペーサー材料を用い、スペーサー層を直接露光、現像することでパターニングすることもできる。

次に薄膜層の形成方法について説明する。まず、図9で示したスペーサーの形成された基板上に正孔輸送層5を形成する。この場合には図16に示すように発光領域の存在する全領域に正孔輸送材料11を蒸着すればよい。

発光層については以下のようにパターニングする。使用するシャドーマスクを図17に示す。マスク部分31に各発光層パターンに対応した形状の開口部32が設けられており、開口部形状の変形を防止するために開口部を横切るようにしてマスク部分と同一面内に形成された補強線33が存在する。さらに、このシャドーマスクは取り扱いを容易にするためにフレーム34に固定されている。次に、図18および図18の側面図である図19に示すように、補強線33がスペーサー4と重なるように第一電極2と開口部32との位置を合わせながら、このシャドーマスクをスペーサー4に密着させる。

つまり、補強線がスペーサーと接触することになる。この状態で発光材料 12 を蒸着することにより所望の領域に発光層 6（この場合は B 発光層）を形成する。この動作を 3 回繰り返すことで、図 20 に示すように第一電極上に各 RGB 発光層 6 をパターニングする。また発光層のパターニングで使用されるシャドーマスクは図 17 のようなマスクに限定されない。例えば図 4 に示した第 2 電極などをパターニングする際に使用されるシャードマスクでパターニングすることも可能である。

シャドーマスクはスペーサーに接触して薄膜層を傷つけることはないので、有機電界発光素子の特性を劣化させることなく、また、基板とシャドーマスクとの位置合わせを容易にすることができる。

各発光層パターンに対応した数のシャドーマスクを用いて発光層をパターニングしてもよいが、マトリクス型発光装置のように同一の発光層パターンが繰り返して形成される場合には、1 枚のシャドーマスクと基板との位置を相対的にずらしながら各発光層をパターニングすることも可能である。

シャドーマスクの構造については特に限定されないが、発光領域に補強線の影となる部分が存在しないように、スペーサーのうち薄膜層の厚さを上回る高さの部分に補強線が一致するように開口部に補強線が配置されていることが好ましい。

補強線幅は特に限定されないが、発光層の存在しない部分、つまり有機電界発光装置における非発光領域の幅より小さいことが好ましい。したがって、補強線幅は $50 \mu m$ より小さいことが好ましく、 $30 \mu m$ より小さいことがさらに好ましい。マスク部分の厚さについては、シャドーマスクの形状保持性の観点からは厚い方がよいが、補強線幅をより小さく作製するために、補強線幅の半分程度以上、

その3倍程度以下であることが好ましい。

第一電極と発光層パターンの平面サイズについては特に限定されないが、第一電極と第二電極との短絡の可能性を低減する観点から、各発光領域に対応する第一電極の露出部分よりも発光層パターンが大きいことが好ましい。図1～3に示した単純マトリクス型発光装置においては、実用レベルでの各発光領域の典型的な横方向ピッチとして $100\mu m$ という値を例示することができる。この場合に第一電極の幅が $70\mu m$ とすれば、第一電極の幅より大きく、隣接する第一電極上には重ならないように、発光層パターンおよび開口部の幅をピッチと等しい $100\mu m$ を中心とした値に設定することが好ましい。

モノクロ発光装置を製造する場合には発光層のパターニング工程を省略することができる。この場合には図16で示した方法と同様に、発光領域の存在する全領域に発光材料を蒸着して発光層を形成すればよい。

電子輸送層については、図21に示すように発光領域の存在する全領域に電子輸送材料13を蒸着して電子輸送層7を形成する。また、図18および図19で示した発光層のパターニング工程において連続して電子輸送材料を蒸着することで、図22に示すように各RGB発光層6に対応した電子輸送層7をパターニングすることも可能である。電子輸送層の形成方法は特に限定されるものではないが、シャドーマスクに異物が付着するなどして第一電極上に発光層の存在しない領域が形成されても、全領域に電子輸送材料を蒸着すればその領域を電子輸送層が被覆して有機電界発光素子の大きな特性劣化を防ぐ効果があるので、前者の方法で電子輸送層を形成することが好ましい。この場合には、発光層から電子輸送層へのエネル

ギー移動による発光色の変化を防ぐために、各発光層のうち最も大きい発光エネルギーと同程度かそれよりも大きい発光エネルギーをもつ電子輸送材料を用いることが好ましい。つまり、図21に示した発光装置の構造においては、B発光層と同程度かそれよりも大きい発光エネルギーをもつ電子輸送材料を用いて電子輸送層7を形成することが好ましい。

なお、上記の正孔輸送層または電子輸送層の形成工程については、有機電界発光素子に含まれる薄膜層の構成によっては省略することが可能である。

次に第二電極のパターニング方法について説明する。使用するシャドーマスクを図4および図5に示す。マスク部分31に第二電極パターンに対応した形状の開口部32が設けられており、開口部形状の変形を防止するために開口部を横切るようにして形成された補強線33が存在する。また、マスク部分の一方の面35と補強線との間には隙間36が存在する。さらに、このシャドーマスクは取り扱いを容易にするためにフレーム34に固定されている。次に、図6および図7に示すように、マスク部分31がスペーサー4と重なるように位置を合わせながら、このシャドーマスクをスペーサーに密着させる。この状態で第二電極材料14を蒸着することにより所望の領域に第二電極8を形成する。補強線33側から飛来してきた第二電極材料は、隙間36が存在するために補強線の影となる部分に回り込んで蒸着されるので、補強線によって第二電極が分断されることはない。

シャドーマスクはスペーサーに接触して薄膜層を傷つけることはないので、有機電界発光素子の特性を劣化させることなく、また、基板とシャドーマスクとの位置合わせを容易にすることができます。

上記のように1回の蒸着工程で第二電極をパターニングする方法が好ましいが、工程数は特に限定されるものではなく、複数のシャドーマスクを用いたり、1枚のシャドーマスクと基板との位置を相対的にずらすなどして、複数の蒸着工程に分けて第二電極をパターニングしてもよい。

第二電極材料の蒸着条件は特に限定されるものではなく、1つの蒸着源から蒸着してもよいが、補強線による第二電極の分断を発生させにくくするためには、補強線に対して複数の異なる方向から第二電極材料を補強線に回り込んで蒸着せしめることが効果的である。このような効果を発現させる方法としては、蒸着物が蒸着源から基板まで直進的に到達する真空蒸着法などの高真空プロセスを用いる場合には、複数の蒸着源から第二電極材料を蒸着したり、1つ以上の蒸着源に対して基板を相対的に移動させながら、もしくは回転させながら第二電極材料を蒸着する方法が工程的には好ましい。また、スペッタリング蒸着法などの低真空プロセスも、原理的に第二電極材料がランダムな方向から飛来して補強線を回り込んで蒸着されやすいので、好ましい方法である。

スペーサーとシャドーマスクのマスク部分との位置関係については特に限定されないが、基板と補強線との間に存在する隙間が実効的に高くなるために補強線に対する第二電極材料の回り込み量が増大し、比較的凹凸の少ない基板上の領域に第二電極材料を蒸着するために第二電極の電気抵抗値の増加を抑制することができ、また、条件によっては薄膜層が第一電極もしくは基板とスペーサーと第二電極とによって完全に囲まれるために、薄膜層への水分の侵入などによる有機電界発光素子の特性劣化を抑制することができるので、図7に示したようにスペーサーのうち薄膜層の厚さを上回る高さの

部分がシャドーマスクのマスク部分、つまり第二電極間に存在することが好ましい。

第二電極のパターニングに使用するシャドーマスクは図4および図23に示した構造に限定されるものではなく、例えば、補強線がメッシュ状であってもよい。また、図24に示す断面図のようにマスク部分31がテーパー形状であってもよいし、図25に示す断面図のように補強線33がマスク部分31と一体化した構造であってもよい。

マスク部分の厚さについては、それが厚いほどマスク部分の一方の面と補強線との間に存在する隙間が高くなり蒸着物の回り込み量が増大するので特に限定はされないが、マスク部分の幅に比べてその厚さの大きなシャドーマスクを精度よく作製することが難しいので、マスク部分の厚さはマスク部分の最小幅と同程度以上、その3倍程度以下であることが好ましい。補強線幅については、基本的には細いほど蒸着物の回り込み量が増大するので、隙間の高さ以下であることが好ましい。また、補強線の本数は、補強線の影となる部分を少なくするために、開口部の変形を十分防止できる範囲内で、できる限り少ない方が好ましい。

なお、必要に応じて第二電極のパターニング工程後に、公知技術あるいは本発明の製造方法におけるパターニング技術を利用して保護層の形成や発光領域の封止を行うことができる。

本発明の製造方法によって有機電界発光装置の発光層もしくは第二電極の少なくとも一方をパターニングすることが好ましいが、本発明はパターニングに使用するシャドーマスクの構造を限定するものではない。したがって、例えば図4に示した補強線がスペーサーに接触しない構造のシャドーマスクを使用して発光層をパターニン

グして、このときの第二電極は公知技術によりパターニングすることも可能である。また、図26に示す補強線33とマスク部分31が同一面内に形成されたシャドーマスクを使用して、図27および図27の側面図である図28に示すように、スペーサー4を比較的高く形成することで補強線33と薄膜層10との間に生じる隙間36を利用して第二電極8をパターニングすることも可能である。

シャドーマスクを構成する材料としては、ステンレス鋼、銅合金、ニッケル合金、アルミニウム合金などの金属材料、公知の樹脂材料、ポリビニル系、ポリイミド系、ポリスチレン系、アクリル系、ノボラック系、シリコーン系などのポリマーに感光性を付与した感光性樹脂材料などを好ましい例として挙げることができるが、特に限定されるものではない。シャドーマスクのマスク部分と補強線とを構成する材料は同一であっても異なっていてもよい。また、図29に示すように、シャドーマスクにおけるスペーサーと密着させる側の面上記樹脂材料を用いて比較的柔軟性の高いクッション部分37を形成することで、両者が密着する際にスペーサーや薄膜層へ与える損傷を防止する効果をさらに向上させることも可能である。

本発明の製造方法においては、マスク部分と補強線との少なくとも一方が磁性材料からなるシャドーマスクを磁力によってスペーサーに密着させることが好ましい。こうすることにより、基板とシャドーマスクとをより均一にかつ確実に密着させることができるので、パターニング精度をより向上させることが可能である。基板とシャドーマスクとの位置合わせの後に両者の相対的位置を固定する方法や、シャドーマスク自体の重量を支える方法は特に限定されるものではなく、磁力を利用してもよいし、機械的方法を利用することも可能である。

マスク部分と補強線との少なくとも一方を構成する磁性材料としては、鉄合金、コバルト合金、ニッケル合金などの金属材料、炭素鋼、タングステン鋼、クロム鋼、コバルト鋼、KS鋼、MK鋼、Alnico鋼、NKS鋼、Cunico鋼、OPフェライト、Baフェライトなどの磁石材料、Sm-Co系やNd-Fe-B系などの希土類磁石材料、ケイ素鋼板、Al-Fe合金、Mn-Zn系フェライト、Ni-Zn系フェライト、Cu-Zn系フェライトなどの磁心材料、カーボニル鉄、Moパーマロイ、センダストなどの微粉末を結合剤とともに圧縮成型させた圧粉材料などを好ましい例として挙げることができる。これら磁性材料をシート状に形成したものからシャドーマスクを作製することが好ましいが、ゴムや樹脂に上記磁性材料の粉末を混合してシート状に形成したものからシャドーマスクを作製することも可能である。また、必要に応じて、はじめから磁化された磁性材料からシャドーマスクを作製してもよいし、シャドーマスクを作製してから磁化させてもよい。

シャドーマスクを磁力によってスペーサーに密着させる方法としては、マスク部分と補強線との少なくとも一方が磁性材料からなるシャドーマスクを、有機電界発光装置の基板裏側に配置された磁石によって吸引することが好ましい。ただし、シャドーマスクとその他1つ以上の物体との間に相互に磁力が及ぼし合えばよいので上記方法は特に限定されるものではなく、例えば、磁石として機能するシャドーマスクと磁性材料からなる基板との組み合わせにより、両者の間に吸引力を働かせて密着性を向上させることも可能である。

磁石としては公知の永久磁石ならびに電磁石を使用することができる。その形状やサイズは特に限定されない。また、単一の磁石を用いてシャドーマスクを吸引してもよいが、複数の磁石を貼り合わ

せたり、所定の間隔で並べたりして形成した磁石の集合体を利用することも可能である。磁石とシャドーマスクとの距離や両者間に働く磁力の大きさについては、シャドーマスクに十分な磁力が及ぶ範囲であれば特に限定されない。

シャドーマスクの製造方法は特に限定されるものではなく、機械的研磨法、サンドブラスト法、焼結法、レーザー加工法などの方法を利用することが可能であるが、加工精度に優れるエッティング法、電鋳法、フォトリソ法を利用することが好ましい。中でも電鋳法はマスク部分を比較的容易に厚く形成できるので特に好ましいシャドーマスクの製造方法である。

シャドーマスクの作製において、マスク部分と補強線とを一度の工程で形成してもよいが、マスク部分と補強線とをそれぞれ別々に形成してから両者を重ね合わせて接続することでシャドーマスクを作製することもできる。この場合には、接着、圧着、溶接など手法により両者を接続してもよいし、両者のうち少なくとも一方が導電性をもつ場合には電着現象を利用して両者を接続してもよい。つまり、マスク部分と補強線とを密着させた状態で電解液中に浸し、通電によって両者の接触部分に電着物を析出させることで両者を接続するものである。一般的に電着物にはニッケルなどの金属材料が選ばれるが、ポリアニリンなどの有機材料を利用することも可能である。また、先に形成されたマスク部分の上に感光性樹脂層を形成し、フォトリソ法により感光性樹脂層をパターニングすることでシャドーマスクを作製することもできる。

本発明の製造方法において使用されるシャドーマスクは、基板全面においてスペーサーと均一に密着させるために、高い平面性を有することが好ましい。しかしながら、微細かつ高精度なパターンを

もつシャドーマスクの強度は大きくないために、シャドーマスクの作製工程中にその平面性が損なわれることが多い。このような場合には、焼き鈍しなどの方法を利用してシャドーマスクの平面性を向上させることができる。また、取り扱い上の観点からシャドーマスクをフレームに固定して使用することが多いが、このような場合には、シャドーマスクに張力あるいは熱を加えながらフレームに固定するなどして、その平面性を向上させることができる。

また、すでに説明したように補強線幅は基本的に小さい方が好ましいが、それだけシャドーマスクの作製工程における取り扱いが難しくなる。したがって、はじめに比較的補強線幅の大きいシャドーマスクを作製してから補強線を所望の線幅に細線化することもできる。工程的にはエッチングによる細線化が容易であるが、細線化方法は特に限定されるものではなく、シャドーマスクを構成する材料によって適当な方法を利用すればよい。

以下、本発明を実施例に基づいて説明する。

参考例

以下では下記実施例で使用したシャドーマスクの作製方法を説明する。

発光層用シャドーマスクの作製方法を以下に説明する。はじめに、電鋳法によって電鋳母型上に Ni-Co 合金を析出させることで、図 35 に示すようなマスク部分 31 の周囲にメッシュ状余白部分 38 の接続されたシートを形成した。次に、メッシュ状余白部分を利用してこのシートに張力を加えながらマスク部分とフレームとを重ね合わせ、両者を接着剤を用いて固定した。最後に、フレームからみ出たメッシュ状余白部分を切り取ることで、高い平面性を有する発光層用シャドーマスクを作製した。

第二電極用シャドーマスクの作製方法を図36を参照しながら以下に説明する。まず、電鋳法によって電鋳母型上にNiを析出させることで、あらかじめメッシュ状の補強線を形成しておいた。はじめに、(a)フォトレジスト20のパターンを有する電鋳母型21上に、(b)Ni-Co合金を析出させることでマスク部分31を形成して、その後(c)フォトレジストのみを除去した。次に(d)補強線33に張力22を加えながらマスク部分に重ね合わせ、電着現象によって両者の接触部分にNiを析出させることで両者を接続した。さらに、(e)張力を保持しながら接続したマスク部分と補強線とを取り外し、(f)マスク部分とフレーム34とを重ね合わせ、両者を接着剤を用いて固定した。最後にフレームからはみ出した補強線を切り取ることで、高い平面性を有する第二電極用シャドーマスクを作製した。

実施例1

発光層パターニング用として、図17に示したようにマスク部分と補強線とが同一平面内に形成された構造のシャドーマスクを用意した。シャドーマスクの外形は $120 \times 84\text{ mm}$ 、マスク部分31の厚さは $25\text{ }\mu\text{m}$ であり、長さ 64 mm 、幅 $305\text{ }\mu\text{m}$ のストライプ状開口部32がピッチ $900\text{ }\mu\text{m}$ で横方向に92本配置されている。各ストライプ状開口部には、開口部と直交する幅 $20\text{ }\mu\text{m}$ 、厚さ $25\text{ }\mu\text{m}$ の補強線33が 1.8 mm おきに形成されている。また、シャドーマスクは外形が等しい幅 4 mm のステンレス鋼製フレーム34に固定されている。

第二電極パターニング用として、図30および図31に示すようにマスク部分31の一方の面35と補強線33との間に隙間36が存在する構造のシャドーマスクを用意した。シャドーマスクの外形

は $120 \times 84 \text{ mm}$ 、マスク部分の厚さは $170 \mu\text{m}$ であり、長さ 100 mm 、幅 $770 \mu\text{m}$ のストライプ状開口部 32 がピッチ $90 \mu\text{m}$ で横方向に 66 本配置されている。マスク部分の上には、幅 $45 \mu\text{m}$ 、厚さ $40 \mu\text{m}$ 、対向する二辺の間隔が $200 \mu\text{m}$ の正六角形構造からなるメッシュ状の補強線が形成されている。隙間の高さはマスク部分の厚さと等しく $170 \mu\text{m}$ である。また、シャドーマスクは外形が等しい幅 4 mm のステンレス鋼製フレーム 34 に固定されている。

第一電極は以下のとおりパターニングした。厚さ 1.1 mm の無アルカリガラス基板表面にスパッタリング蒸着法によって厚さ 150 nm のITO透明電極が形成されたITOガラス基板（ジオマテック社製）を $120 \times 100 \text{ mm}$ の大きさに切断した。ITO基板上にフォトレジストを塗布して、通常のフォトリソ法による露光、現像によってフォトレジストをパターニングした。ITOの不要部分をエッチングした後にフォトレジストを除去することで、ITOを長さ 90 mm 、幅 $270 \mu\text{m}$ のストライプ形状にパターニングした。図8に示したように、このストライプ状第一電極 2 は $300 \mu\text{m}$ ピッチで横方向に 272 本配置されている。

スペーサーは以下のとおり形成した。ポリイミド系の感光性コートィング剤（東レ社製、UR-3100）をスピンドルコート法により前記ITO基板上に塗布して、クリーンオーブンによる窒素雰囲気下で 80°C 、1時間プリベーキングした。さらに、前記塗布膜にフォトマスクを介して紫外光を露光して所望部分を光硬化させ、現像液（東レ社製、DV-505）を用いて現像した。最後にパターニングされた前記塗布膜をクリーンオーブン中で 180°C 、30分間、さらに、 250°C 、30分間ベーキングして、図1～3に示したよ

うな第一電極に直交するスペーサー4を形成した。この透明なスペーサーは、長さ90mm、幅150μm、高さ4μmであり、900μmピッチで横方向に67本配置されている。また、このスペーサーは良好な電気絶縁性を有していた。

上記スペーサーを形成したITO基板を洗浄した後で真空蒸着機内にセットした。また、上記発光層用シャドーマスク3枚、第二電極用シャドーマスク1枚を真空蒸着機内にセットした。本真空蒸着機では、真空中においてそれが10μm程度の精度で基板と位置合わせができるように、上記4種類のシャドーマスクを交換することが可能である。

薄膜層は抵抗線加熱方式による真空蒸着法によって以下のように形成した。なお、蒸着時の真圧度は 2×10^{-4} Pa以下であり、蒸着中は蒸着源に対して基板を回転させた。

まず、図16に示したような配置において、銅フタロシアニンを20nm、ビス(N-エチルカルバゾール)を200nm基板全面に蒸着して正孔輸送層5を形成した。

次に、第一の発光層用シャドーマスクを基板前方に配置して両者を密着させ、基板後方にはフェライト系板磁石(日立金属社製、YBM-1B)を配置した。この際、図18および図19に示したように、ストライプ状第一電極2がシャドーマスクのストライプ状開口部32の中心に位置し、補強線33がスペーサー4の位置と一致し、かつ補強線とスペーサーが接触するように、両者は位置合わせされている。この状態で8-ヒドロキシキノリン-アルミニウム錯体(AIq₅)を30nm蒸着して、G発光層をパターニングした。次に、前記G発光層のパターニングと同様にして第二の発光層用シャドーマスクを使用し、1wt%の4-(ジシアノメチレン)-2

-メチル-6-(パラジメチルアミノスチリル)-4-ピラン(DCM)をドーピングしたA1q₃を30nm蒸着して、R発光層をパターニングした。なお、第三の発光層用シャドーマスクは使用せず、本実施例ではB発光層のパターニングは行わなかった。

さらに、図21に示したような配置において、4, 4' -ビス(2, 2' -ジフェニルビニル)ビフェニル(DPVBi)を90nm、A1q₃を30nm基板全面に蒸着してB発光層を兼用する電子輸送層7を形成した。この後に、薄膜層をリチウム蒸気にさらしてドーピング(膜厚換算量0.5nm)した。

第二電極は抵抗線加熱方式による真空蒸着法によって以下のように形成した。なお、蒸着時の真空中度は 3×10^{-4} Pa以下であり、蒸着中は2つの蒸着源に対して基板を回転させた。

上記発光層のパターニングと同様に、第二電極用シャドーマスクを基板前方に配置して両者を密着させ、基板後方には磁石を配置した。この際、図7に示したように、スペーサー4がマスク部分31の位置と一致するように両者は位置合わせされている。この状態でアルミニウムを40.0nmの厚さに蒸着して第二電極8をパターニングした。

最後に、図21に示したような配置において、一酸化ケイ素を200nm電子ビーム蒸着法によって基板全面に蒸着して、保護層を形成した。

上記のようにして、図32~34に模式的に示すように、幅270μm、ピッチ300μm、本数272本のITOストライプ状第一電極2上に、パターニングされたRG発光層6およびB発光層を兼用する電子輸送層7を含む薄膜層10が形成され、前記第一電極と直交するように幅750μm、ピッチ900μmのストライプ状

第二電極 8 が 6 6 本配置された単純マトリクス型カラー発光装置を作製した。RGB からなる 3 つの発光領域が 1 画素を形成するので、本発光装置は $900 \mu m$ ピッチで 90×66 画素を有する。

本発光装置では電子輸送層が図 33 に示すように基板全面に形成されており、パターニング工程の簡略化と、すでに述べた発光装置の特性劣化を防ぐ効果をもつ構造である。さらに、2 回の発光層パターニング工程で RGB の 3 色の発光領域が形成されており、パターニング工程数の減少が可能な構造でもある。

各ストライプ状第二電極は、シャドーマスクの補強線によって分断されることなく $100 mm$ の長さ方向に渡って電気的に十分低抵抗であった。一方、幅方向に隣り合う第二電極同士の短絡は皆無で、完全に絶縁されていた。

本発光装置の発光領域は $270 \times 750 \mu m$ の大きさで RGB それぞれ独立の色で均一に発光した。また、発光層のパターニング時における発光材料の回り込みなどによる発光領域の発光色純度低下も認められなかった。

また、回路内に発生した蓄積電荷を走査ライン選択切り替え時に放電する機能をもつ線順次駆動回路によって、この発光装置を線順次駆動したところ、明瞭なパターン表示とそのマルチカラー化が可能であった。

実施例 2

正孔輸送層を形成するまでは実施例 1 と同様に行った。

次に、第一の発光層用シャドーマスクを基板前方に配置して両者を密着させ、基板後方にはフェライト系板磁石（日立金属社製、 YM-BM-1B）を配置した。この際、図 18 および図 19 に示したように、ストライプ状第一電極 2 がシャドーマスクのストライプ状開

口部 32 の中心に位置し、補強線 33 がスペーサー 4 の位置と一致し、かつ補強線とスペーサーが接触するように、両者は位置合わせされている。この状態で Alq₃ を 30 nm 蒸着して、G 発光層をパターニングした。次に、前記 G 発光層のパターニングと同様にして第二の発光層用シャドーマスクを使用し、1 wt % の DCM をドーピングした Alq₃ を 40 nm 蒸着して、R 発光層をパターニングした。さらに、同様にして第三の発光層用シャドーマスクを使用し、DPVBi を 30 nm 蒸着して、B 発光層をパターニングした。

それぞれの発光層は図 20 に示したようにストライプ状第一電極 2 の 3 本おきに配置され、前記第一電極の露出部分を完全に覆っている。

さらに、図 21 に示したような配置において、DPVBi を 90 nm、Alq₃ を 30 nm 基板全面に蒸着して電子輸送層 7 を形成した。この後に、薄膜層 10 をリチウム蒸気にさらしてドーピング（膜厚換算量 0.5 nm）した。

その後、第二電極のパターニングおよび保護層の形成は実施例 1 と同様に行った。

上記のようにして、図 1～3 に模式的に示すように、幅 270 μm、ピッチ 300 μm、本数 272 本の ITO ストライプ状第一電極 2 上に、パターニングされた RGB 発光層 6 を含む薄膜層 10 が形成され、前記第一電極と直交するように幅 750 μm、ピッチ 900 μm のストライプ状第二電極 8 が 66 本配置された単純マトリクス型カラー発光装置を作製した。RGB からなる 3 つの発光領域が 1 画素を形成するので、本発光装置は 900 μm ピッチで 90 × 66 画素を有する。

本発光装置では電子輸送層が図 2 に示すように基板全面に形成さ

れており、パターニング工程の簡略化と、すでに述べた発光装置の特性劣化を防ぐ効果をもつ構造である。

各ストライプ状第二電極は、実施例1と同様に長さ方向に渡って電気的に十分低抵抗であり、短絡は皆無であった。

作製した発光装置の発光領域は $270 \times 750 \mu\text{m}$ の大きさでRGBそれぞれ独立の色で均一に発光した。また、発光層のパターニング時における発光材料の回り込みなどによる発光領域の発光色純度低下も認められなかった。

また、実施例1と同様にこの発光装置を線順次駆動したところ、明瞭なパターン表示とそのマルチカラー化が可能であった。

実施例3

実施例1と同様の工程で第一電極のITOを長さ90mm、幅280μmのストライプ形状にパターニングした後に、フォトレジストを除去した。実施例1と同様に、このストライプ状第一電極はガラス基板上に300μmピッチで横方向に272本配置されている。

次に、スペーサーを以下のとおり形成した。40%メタクリル酸、30%のメチルメタクリレートおよび30%のスチレンからなる共重合体のカルボキシル基に対して0.4当量のグリシジルメタクリレートを付加反応させ、側鎖のカルボキシル基とエチレン不飽和基を有するアクリル系共重合体を得た。このアクリル共重合体50重量部、光反応性化合物として2官能ウレタンアクリレート系オリゴマー（日本化薬社製、UX-4101）20重量部、アクリル系モノマーとしてヒドロキシピバリン酸エステルネオペンチルグリコールジアクリレート（日本化薬社製、HX-220）20重量部にシクロヘキサン200重量部を加え、1時間常温で攪拌して樹脂成分溶液を得た。この樹脂成分溶液に、光重合開始剤としてジエチルチ

オキサントン（日本化薬社製、D E T X - S）8重量部、増感剤としてp-ジメチルアミノ安息香酸エチルエステル（日本化薬社製、E P A）3重量部を加え、さらに着色剤としてアゾ系クロム錯塩の油溶性染料メチルエチルケトン／メチルイソブチルケトン30重量%溶液（オリエント化学社製、3804T）とフタロシアニン系黒色顔料とを添加して、20分間常温で攪拌して感光性黒色ペーストを得た。

この感光性黒色ペーストの濃度を調節してからスピンドルコート法により前記ITO基板上に塗布して、クリーンオーブンによる窒素雰囲気下で80℃、5分間プリベーキングした。さらに、前記塗布膜にフォトマスクを介して紫外光を露光して所望部分を光硬化させ、0.4容積%の2-アミノエタノール水溶液で現像した。最後にパターニングされた前記塗布膜をクリーンオーブン中で120℃、30分間ベーキングして、図13～15に示したようにマトリクス状の第1のスペーサー3を形成した。この黒色のスペーサーは高さ0.5μmであり、このスペーサーが存在しない270×750μmの大きさの領域には第一電極が露出している。また、この第一のスペーサーは第一電極の端部5μmを被覆するように形成した。

さらに、前記感光性黒色ペーストを使用して、同様のフォトリソ工程により、第二のスペーサー4を形成した。この黒色のスペーサーは、図13～15に示したように前記第一のスペーサーにおける第一電極と直交する部分の上に重ねて形成されており、長さ90mm、幅130μm、高さ4μmであり、900μmピッチで横方向に67本配置されている。なお、上記2種類のスペーサーはそれぞれ良好な電気絶縁性を有していた。

上記以外は実施例1と同様にして、図13～15に模式的に示す

ような単純マトリクス型カラー発光装置を作製した。RGBからなる3つの発光領域が1画素を形成するので、本発光装置は $900\mu m$ ピッチで 90×66 画素を有する。

各ストライプ状第二電極は、実施例1と同様に長さ方向に渡って電気的に十分低抵抗であり、短絡は皆無であった。

作製した発光装置の発光領域は $270 \times 750\mu m$ の大きさでRGBそれぞれ独立の色で均一に発光した。また、発光層のパターニング時における発光材料の回り込みなどによる発光領域の発光色純度低下も認められなかった。

また、実施例1と同様にこの発光装置を線順次駆動したところ、明瞭なパターン表示とそのマルチカラー化が可能であった。さらに、発光領域の周囲に黒色のスペーサーが形成されており、ブラックマトリクスとして機能することから、実施例1および2に比べて表示コントラストが向上した。

比較例1

スペーサーを形成しなかったこと以外は、実施例1と同様にして単純マトリクス型カラー発光装置を作製した。

実施例1と同様に、各ストライプ状第二電極はシャドーマスクの補強線によって分断されることなく $100mm$ の長さ方向に渡って電気的に十分低抵抗であり、幅方向に隣り合う第二電極同士の短絡は皆無であった。また、発光領域も $270 \times 750\mu m$ の大きさでRGBそれぞれ独立の色で均一に発光し、発光層のパターニング時における発光材料の回り込みなどによる各発光領域の発光色純度低下も認められなかった。

しかしながら、この発光装置を線順次駆動したところ、非発光領域の存在が目立ち、また、クロストーク現象が発生したため、明瞭

なパターン表示をすることができなかった。

比較例 2

開口部の形状は同じであるが、補強線が形成されていない発光層用シャドーマスクを使用したこと以外は、実施例1と同様にして単純マトリクス型カラー発光装置を作製した。

実施例1と同様に、各ストライプ状第二電極はシャドーマスクの補強線によって分断されることなく100mmの長さ方向に渡って電気的に十分低抵抗であり、幅方向に隣り合う第二電極同士の短絡は皆無であった。また、発光領域の大きさも $270 \times 750 \mu\text{m}$ の大きさであった。

しかしながら、発光層のパターニング時における発光材料の回り込みにより、各発光領域の発光色はRGBが混合した状態であった。また、発光層の膜厚むらによる各発光領域間の発光輝度むらが認められた。

また、この発光装置を線順次駆動したところ、明瞭なパターン表示をすることは可能であったが、マルチカラー化については不鮮明であった。

比較例 3

開口部の形状は同じであるが、メッシュ状の補強線が形成されていない第二電極用シャドーマスクを使用したこと以外は、実施例1と同様にして単純マトリクス型カラー発光装置を作製した。

しかしながら、各ストライプ状第二電極の幅は長さ方向において大きく異なり、一部の第二電極は長さ方向の途中で断線しており、多くの第二電極は幅方向に隣り合う第二電極と完全に短絡していた。また、発光領域の大きさも非常に大きくばらついた。この発光装置を線順次駆動したが、隣り合う第二電極同士の短絡によりパターン

表示をすることは不可能であった。³⁷

実施例 4

発光層パターニング用として、図 17 に示したマスク部分と補強線とが同一平面内に形成された構造のシャドーマスクを用意した。シャドーマスクの外形は $120 \times 84 \text{ mm}$ 、マスク部分 31 の厚さは $25 \mu\text{m}$ であり、長さ 64 mm 、幅 $105 \mu\text{m}$ のストライプ状開口部 32 がピッチ $300 \mu\text{m}$ で横方向に 272 本配置されている。各ストライプ状開口部には、開口部と直交する幅 $20 \mu\text{m}$ 、厚さ $25 \mu\text{m}$ の補強線 33 が 1.8 mm おきに形成されている。また、シャドーマスクは外形が等しい幅 4 mm のステンレス鋼製フレーム 34 に固定されている。

第二電極パターニング用として、図 30 および図 31 に示したマスク部分 31 の一方の面 35 と補強線 33との間に隙間 36 が存在する構造のシャドーマスクを用意した。シャドーマスクの外形は $120 \times 84 \text{ mm}$ 、マスク部分の厚さは $100 \mu\text{m}$ であり、長さ 100 mm 、幅 $245 \mu\text{m}$ のストライプ状開口部 32 がピッチ $300 \mu\text{m}$ で横方向に 200 本配置されている。マスク部分の上には、幅 $40 \mu\text{m}$ 、厚さ $35 \mu\text{m}$ 、対向する二辺の間隔が $200 \mu\text{m}$ の正六角形構造からなるメッシュ状の補強線が形成されている。隙間の高さはマスク部分の厚さと等しく $100 \mu\text{m}$ である。また、シャドーマスクは外形が等しい幅 4 mm のステンレス鋼製フレーム 34 に固定されている。

まず、実施例 1 と同様の工程で第一電極の ITO を長さ 90 mm 、幅 $70 \mu\text{m}$ のストライプ形状にパターニングした。図 8 に示したように、このストライプ状第一電極 2 は $100 \mu\text{m}$ ピッチで横方向に 816 本配置されている。

次に、実施例1と同様のフォトリソ工程により、図1～3に示したような第一電極に直交するスペーサー4を形成した。この透明なスペーサーは、長さ90mm、幅60μm、高さ4μmであり、300μmピッチで横方向に201本配置されている。また、このスペーサーは良好な電気絶縁性を有していた。

上記のシャドーマスクを使用して、実施例1と同様にして単純マトリクス型カラー発光装置を作製した。この発光装置では、図32～34に模式的に示すように、幅70μm、ピッチ100μm、本数816本のITOストライプ状第一電極2上に、パターニングされたRG発光層6およびB発光層を兼用する電子輸送層7を含む薄膜層10が形成され、前記第一電極と直交するように幅240μm、ピッチ300μmのストライプ状第二電極8が200本配置されている。RGBからなる3つの発光領域が1画素を形成するので、本発光装置は300μmピッチで272×200画素を有する。

各ストライプ状第二電極は、シャドーマスクの補強線によって分断されることなく100mmの長さ方向に渡って電気的に十分低抵抗であった。一方、幅方向に隣り合う第二電極同士の短絡は皆無で、完全に絶縁されていた。

本発光装置の発光領域は70×240μmの大きさでRGBそれぞれ独立の色で均一に発光した。また、発光層のパターニング時ににおける発光材料の回り込みなどによる発光領域の発光色純度低下も認められなかった。

また、回路内に発生した蓄積電荷を走査ライン選択切り替え時に放電する機能をもつ線順次駆動回路によって、この発光装置を線順次駆動したところ、明瞭なパターン表示とそのマルチカラー化が可能であった。

産業上の利用可能性

本発明の有機電界発光装置の製造方法は、シャドーマスクを少なくとも一部分が薄膜層の厚さを上回る高さをもつスペーサーに密着するため薄膜層を傷つけることがないので、有機電界発光素子の特性を劣化させることがない。磁力によって基板とシャドーマスクとの密着性を向上させたり、両者の位置合わせを行う場合に、この効果は特に大きい。

そのうえ、補強線によりシャドーマスクの開口部の形状が変形しないので、マスク法によって発光層や第二電極などの微細パターニングを高精度に実現することが可能である。

さらに第二電極のパターニング方法として例示したように、補強線の影となる部分に蒸着物を回り込ませて蒸着せしめることもできるので、多様な蒸着角度が存在するような条件でもパターニングを高精度に実現することが可能である。したがって、多数の蒸着源を使用して蒸着したり、スパッタリング蒸着法などを利用することができるので、広い面積に渡って均一なパターニングを実現する場合に、この効果は特に大きい。

また、一度の蒸着工程で任意の形状をパターニングできるので、工程数を少なくすることが可能である。また、製造する発光装置の構造が限定されることがない。

40
請求の範囲

1. 基板上に形成された第一電極と、少なくとも有機化合物からなる発光層を含み前記第一電極上に形成された薄膜層と、前記薄膜層上に形成された複数の第二電極とを含み、前記基板上に複数の発光領域を有する有機電界発光装置の製造方法であって、少なくとも一部分が前記薄膜層の厚さを上回る高さをもつスペーサーを前記基板上に形成する工程と、開口部を横切るようにして形成された補強線を有するシャドーマスクを前記スペーサーに密着させた状態で蒸着物を蒸着せしめることによりパターニングする工程とを含むことを特徴とする有機電界発光装置の製造方法。
2. マスク部分と補強線との少なくとも一方が磁性材料からなるシャドーマスクを磁力によってスペーサーに密着させることを特徴とする請求項1記載の有機電界発光装置の製造方法。
3. 補強線の影となる部分に蒸着物を回り込ませて蒸着せしめることによりパターニングすることを特徴とする請求項1記載の有機電界発光装置の製造方法。
4. スペーサーと接触しない補強線を有するシャドーマスクを使用して第二電極をパターニングすることを特徴とする請求項1記載の有機電界発光装置の製造方法。
5. スペーサーと接触する補強線を有するシャドーマスクを使用して発光層をパターニングすることを特徴とする請求項1記載の有機電界発光装置の製造方法。
6. 第一電極は横方向に間隔をあけて基板上に配置された複数のストライプ状電極であり、第二電極は、補強線の影となる部分に蒸着物を回り込ませて蒸着せしめることにより、横方向に間隔をあけて配置され、前記第一電極に対して交差する複数のストライプ状電極

にパターニングされることを特徴とする請求項 1 記載の有機電界発光装置の製造方法。

7. スペーサーを第一電極に沿って第一電極間に位置するように形成することを特徴とする請求項 6 記載の有機電界発光装置の製造方法。
8. スペーサーを第一電極の端部を被覆するように形成することを特徴とする請求項 7 記載の有機電界発光装置の製造方法。
9. スペーサーを第一電極と交差して第二電極間に位置するように形成することを特徴とする請求項 6 記載の有機電界発光装置の製造方法。
10. 薄膜層の一部としてビスカルバゾリル骨格を含む有機化合物からなる有機層を形成する工程を含むことを特徴とする請求項 1 記載の有機電界発光装置の製造方法。
11. スペーサーの少なくとも一部分を黒色化することを特徴とする請求項 1 記載の有機電界発光装置の製造方法。

図1

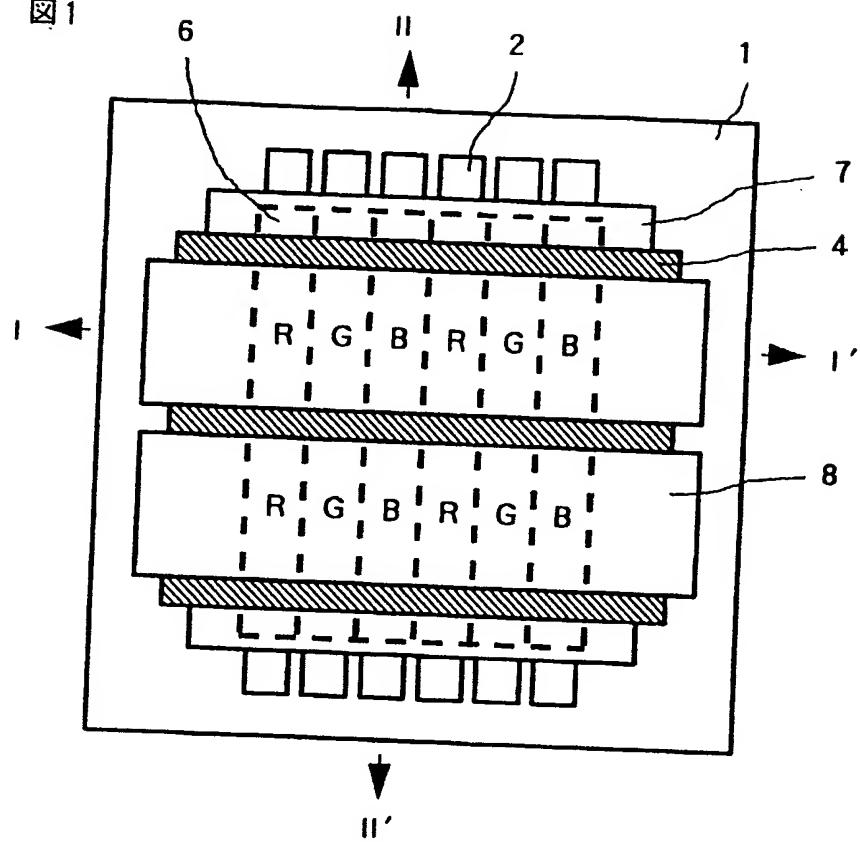


図2

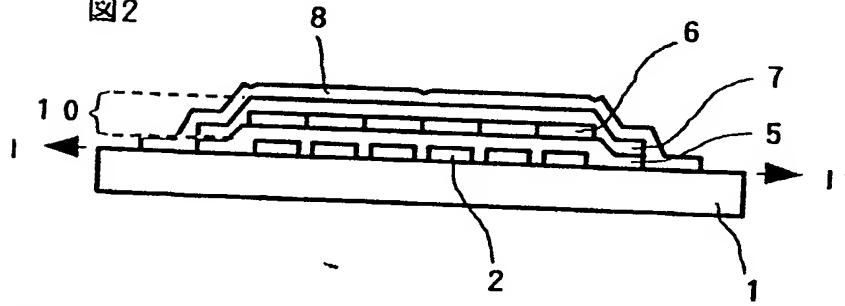


図3

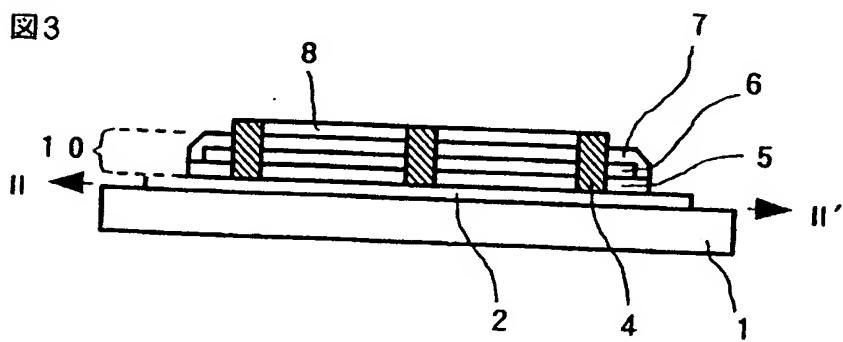


図4

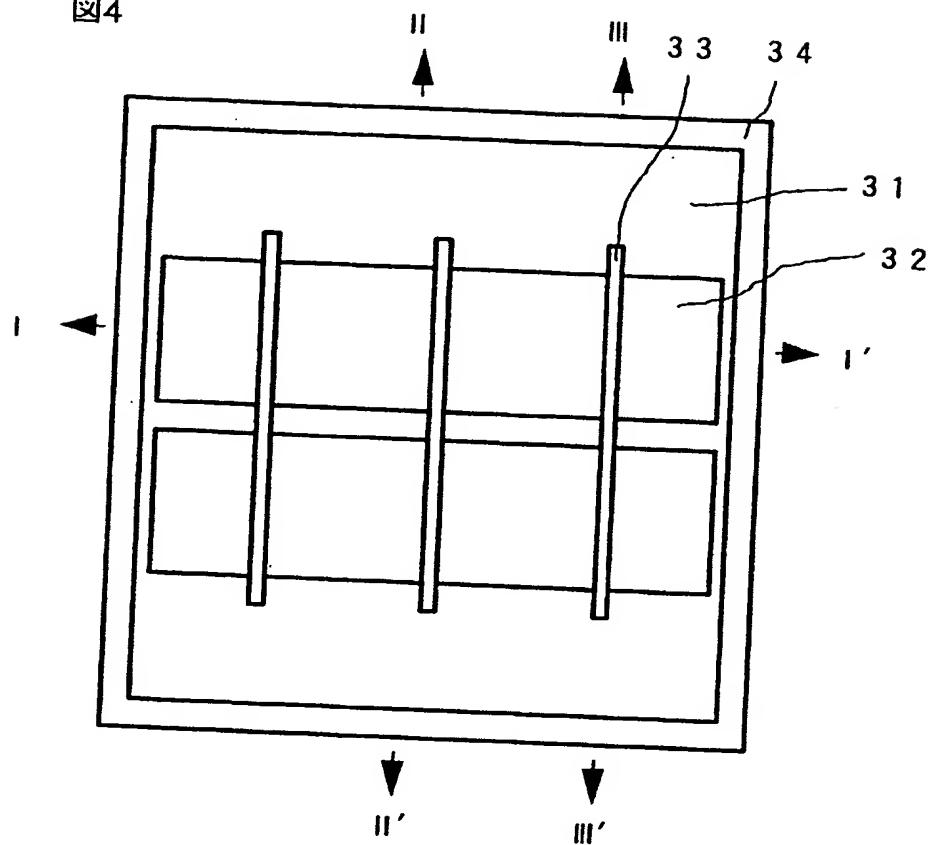


図5

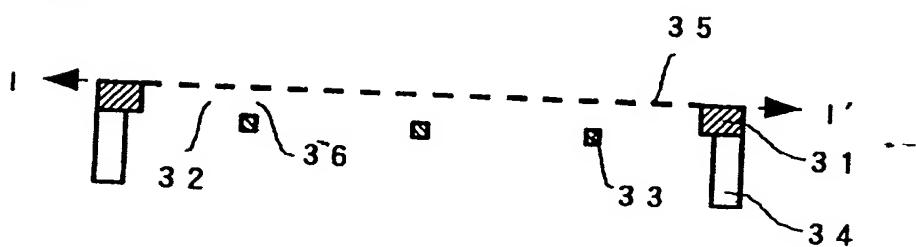


図6

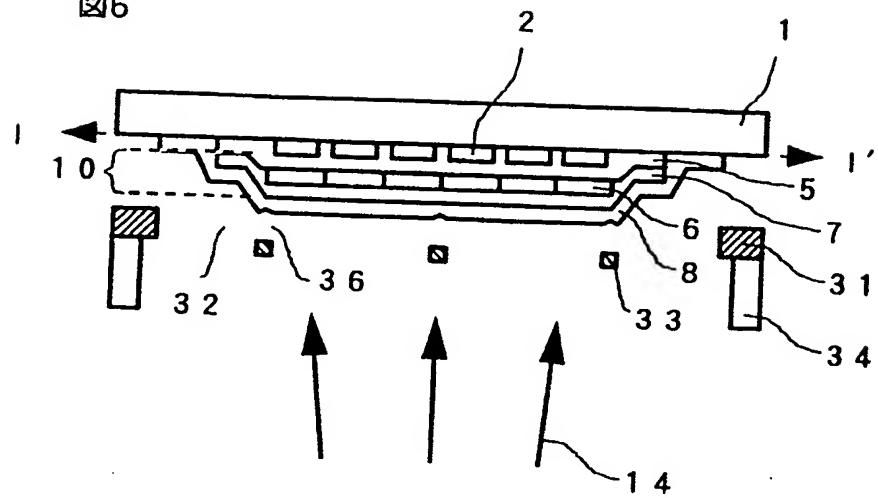


図7

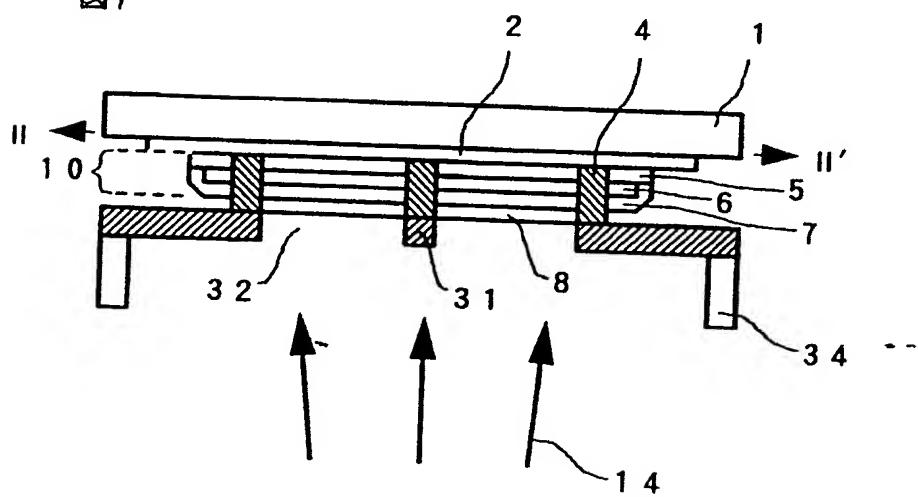


図8

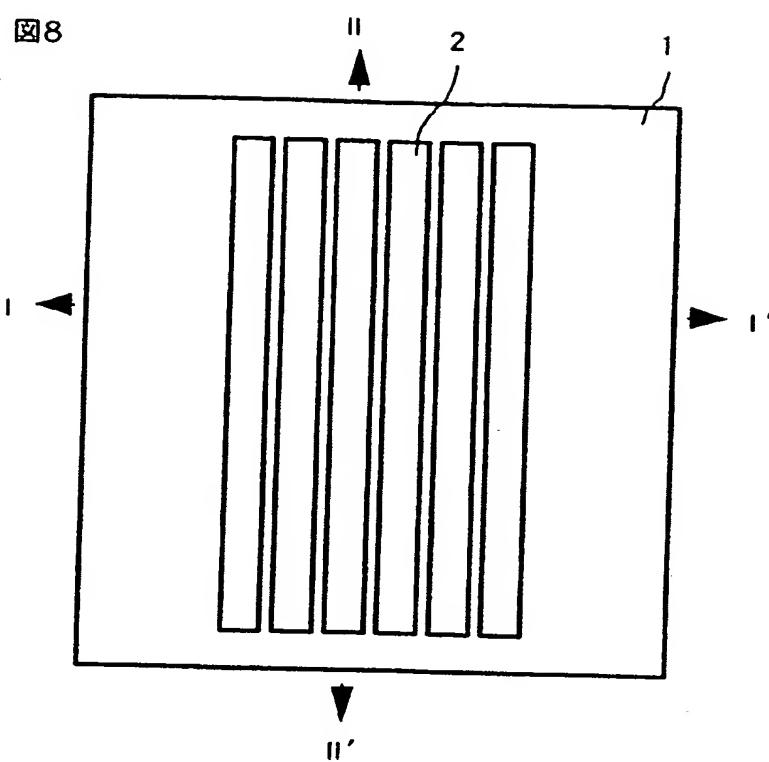


図9

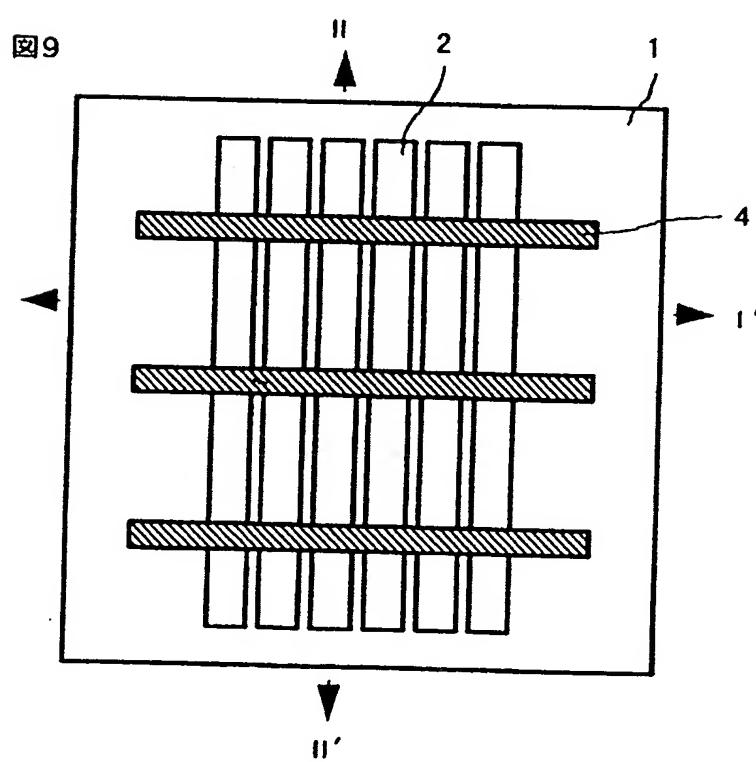


図10

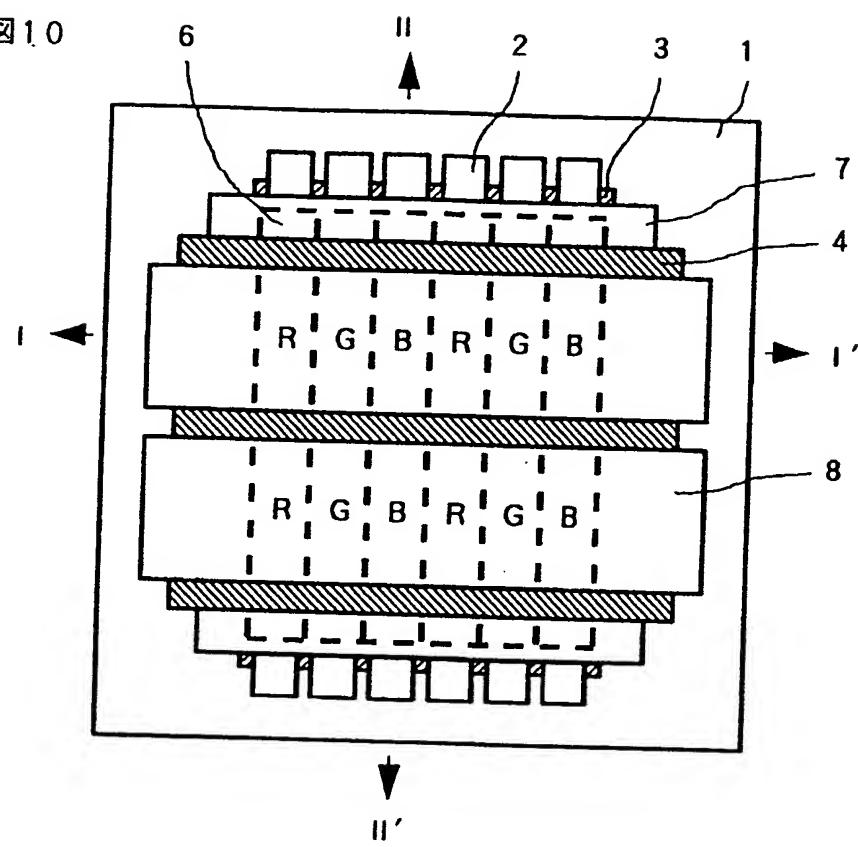


図11

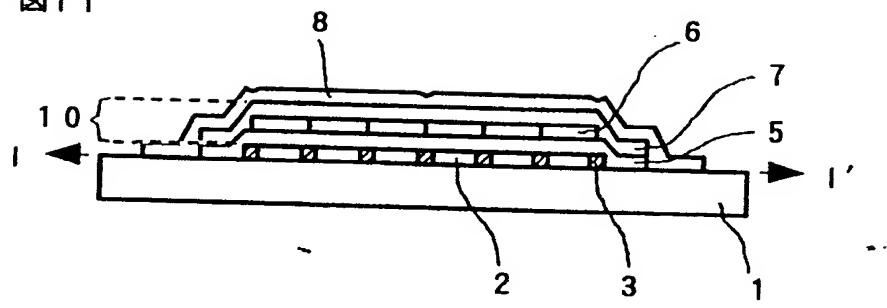


図12

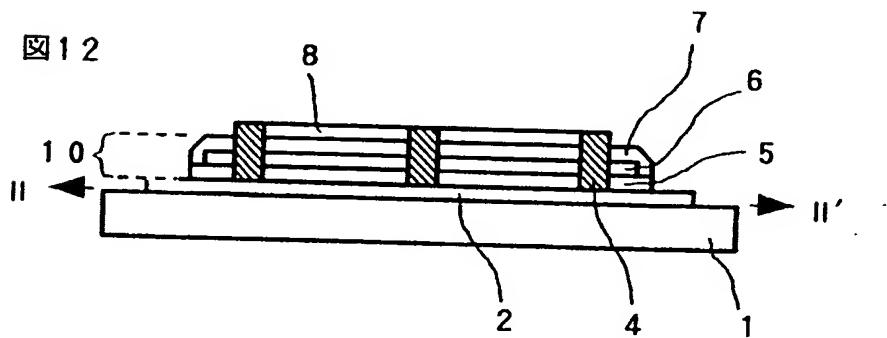


図13

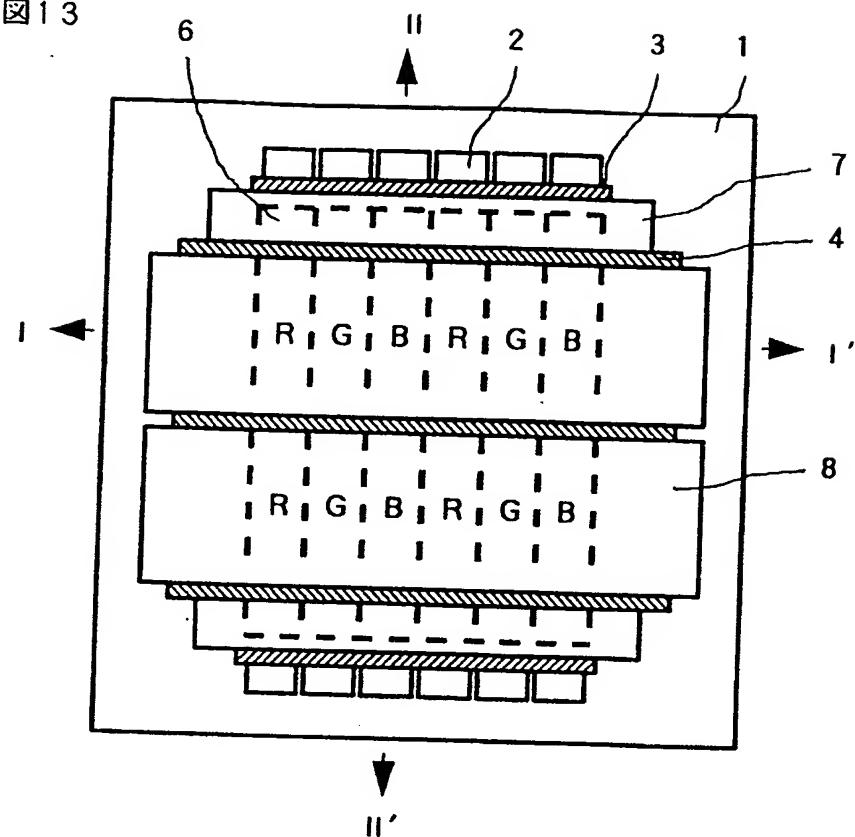


図14

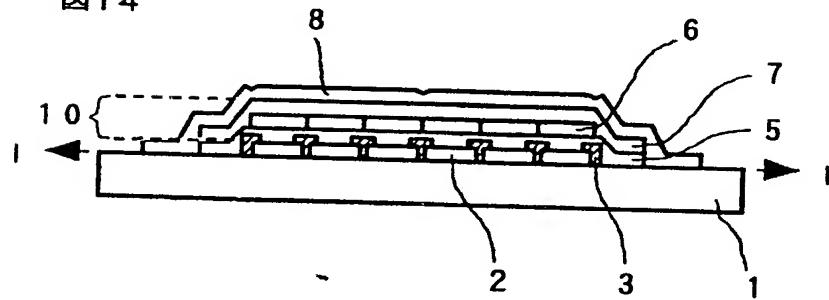


図15

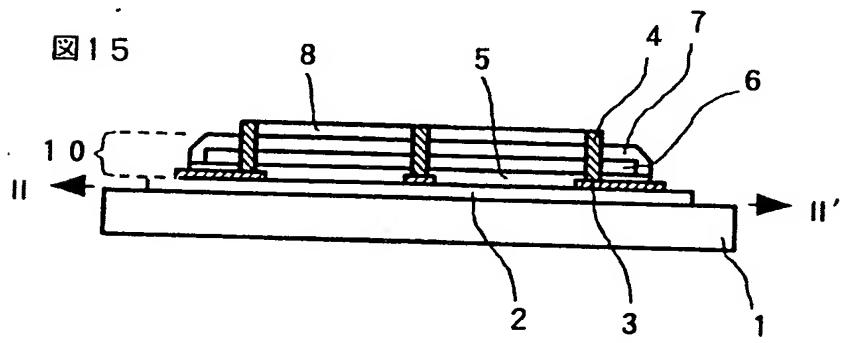


図16

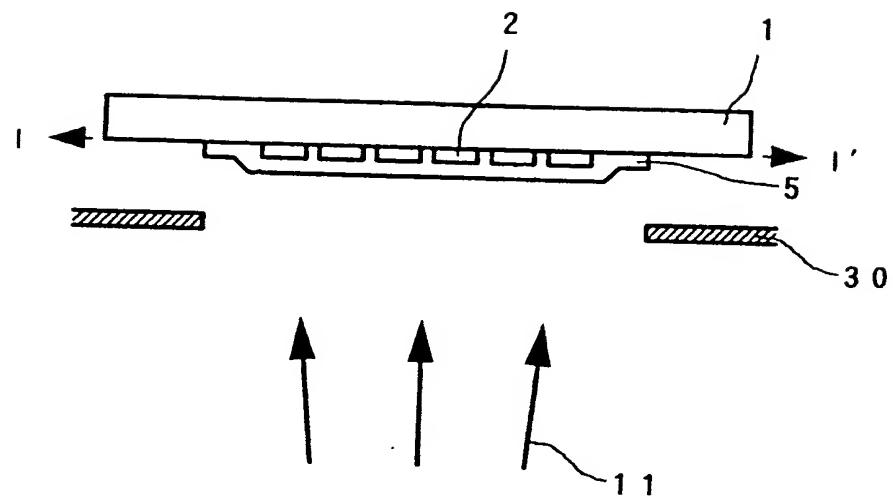


図17

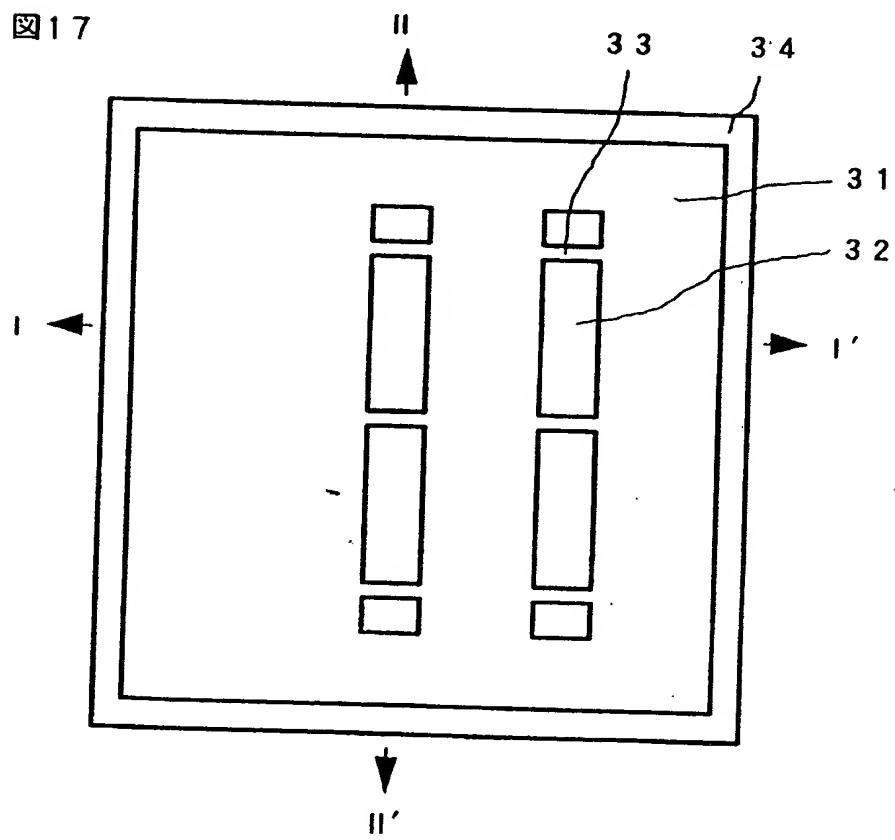


図18

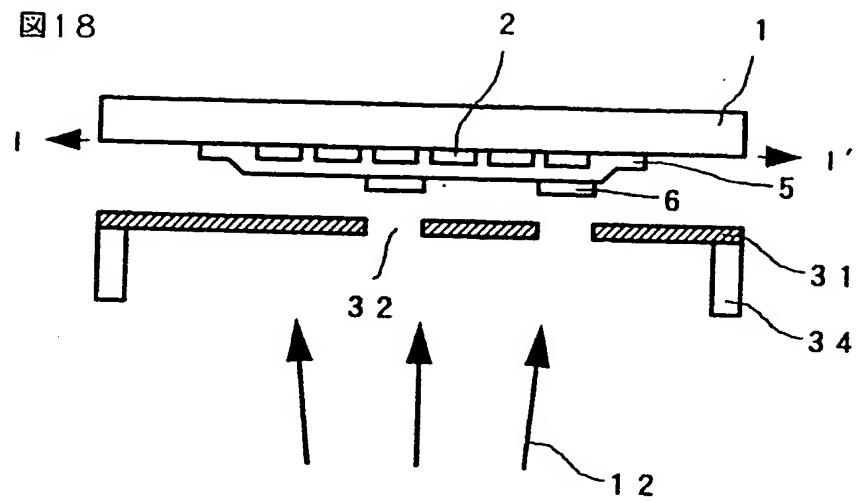


図19

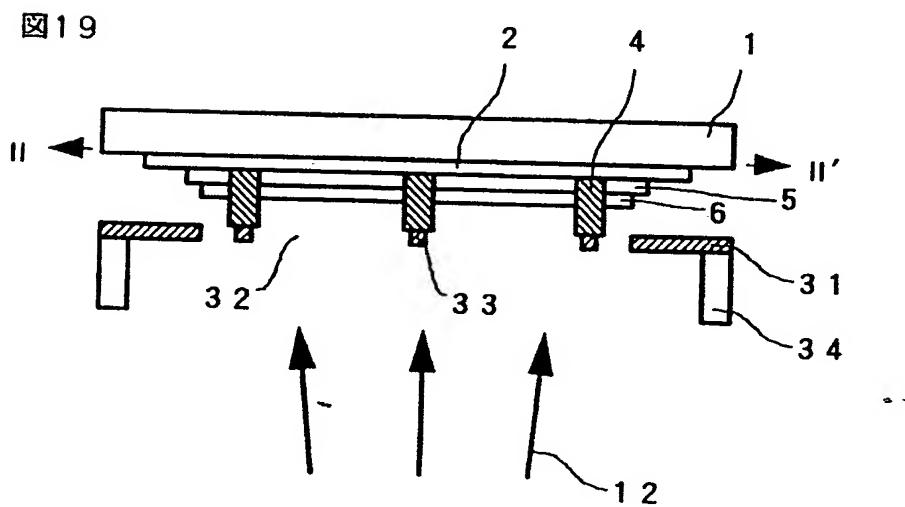


図20

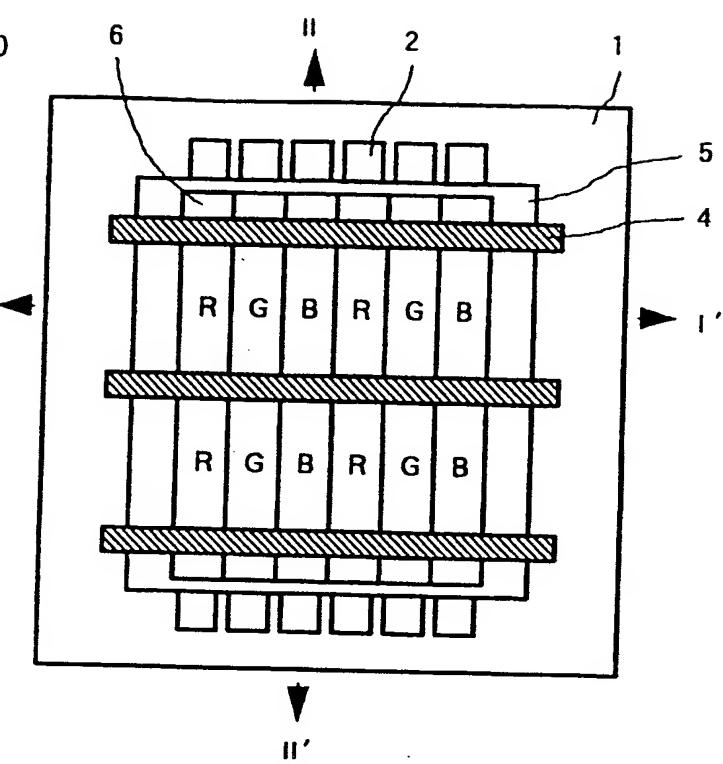


図21

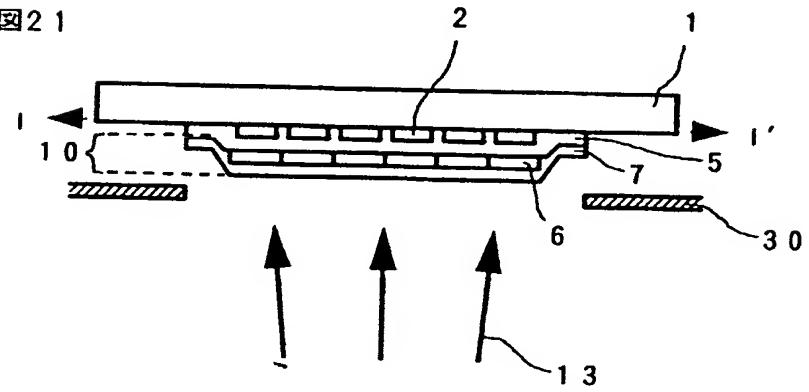


図22

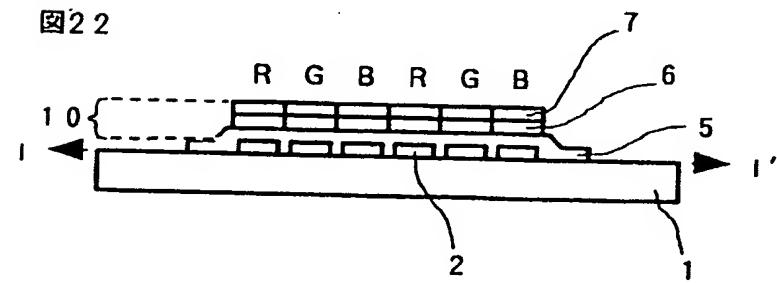


図23

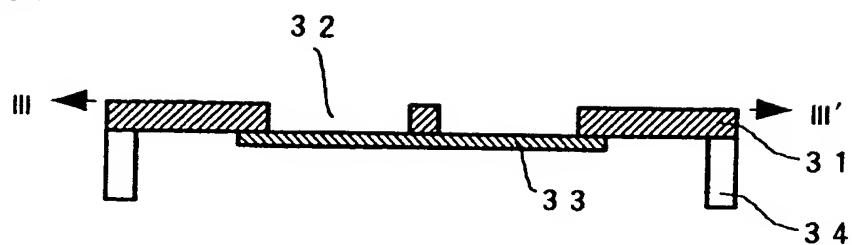


図24

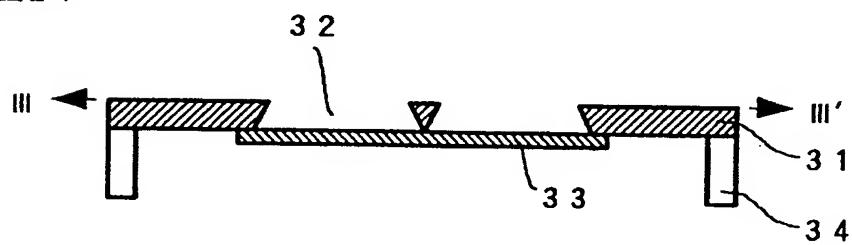


図25

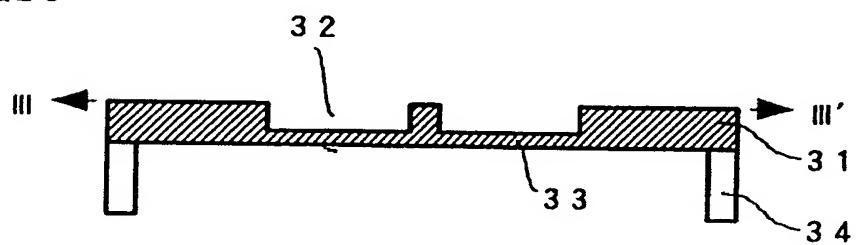


図26

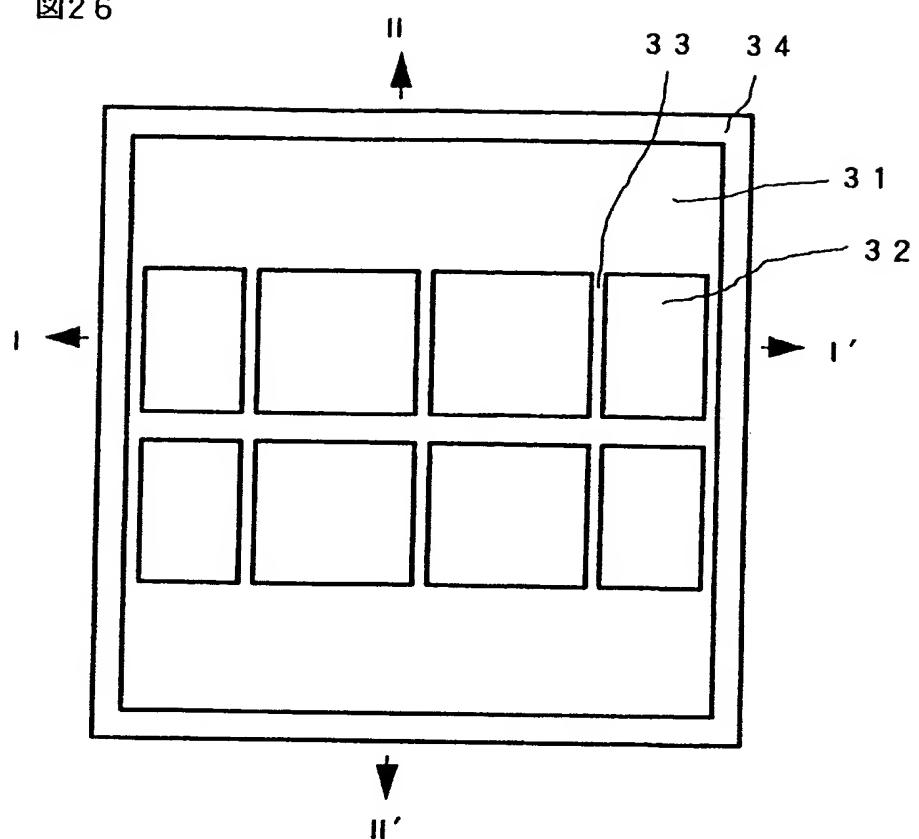


図27

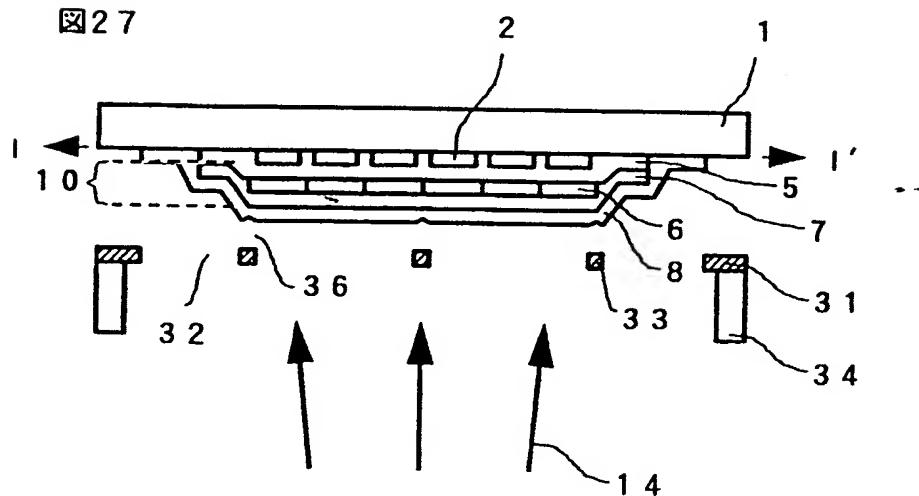


図28

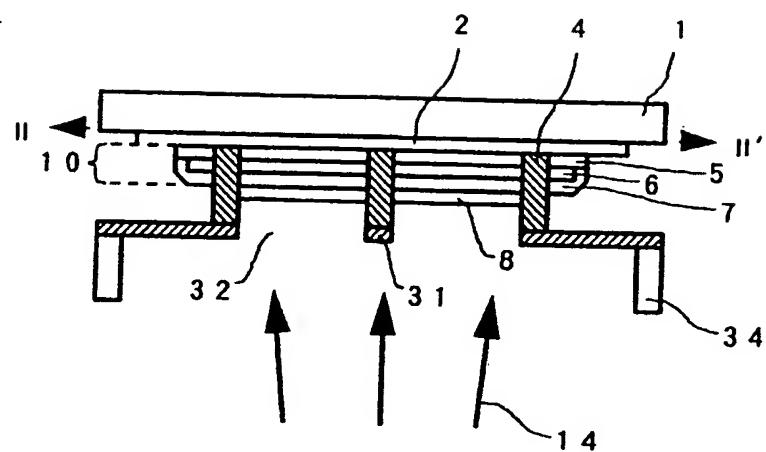


図29

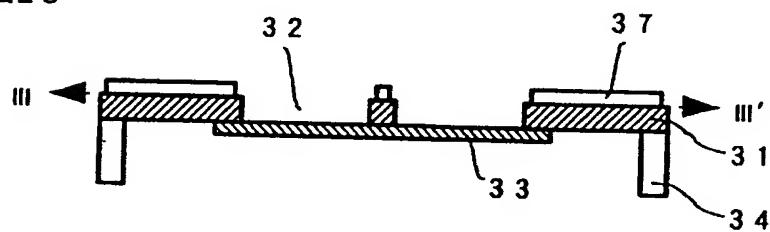


図30

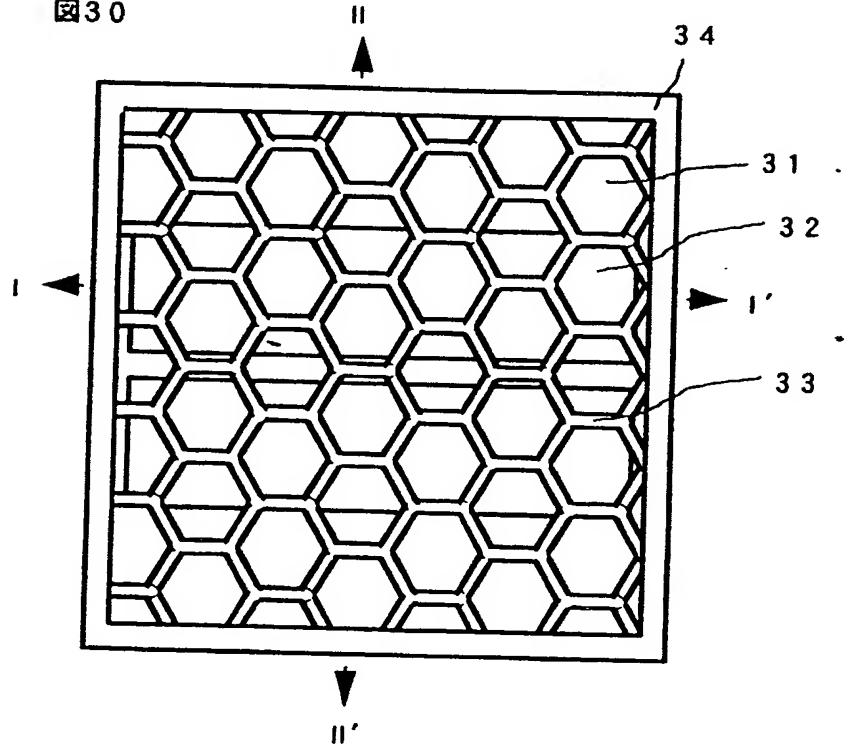


図31

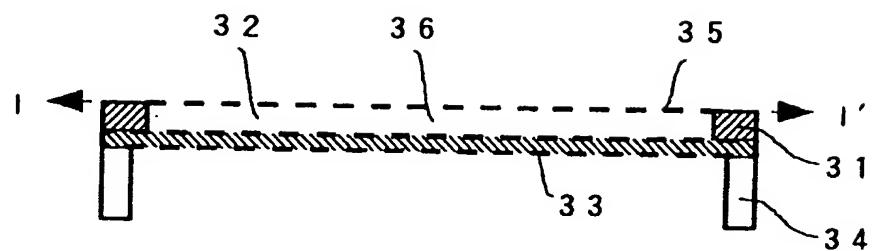


図32

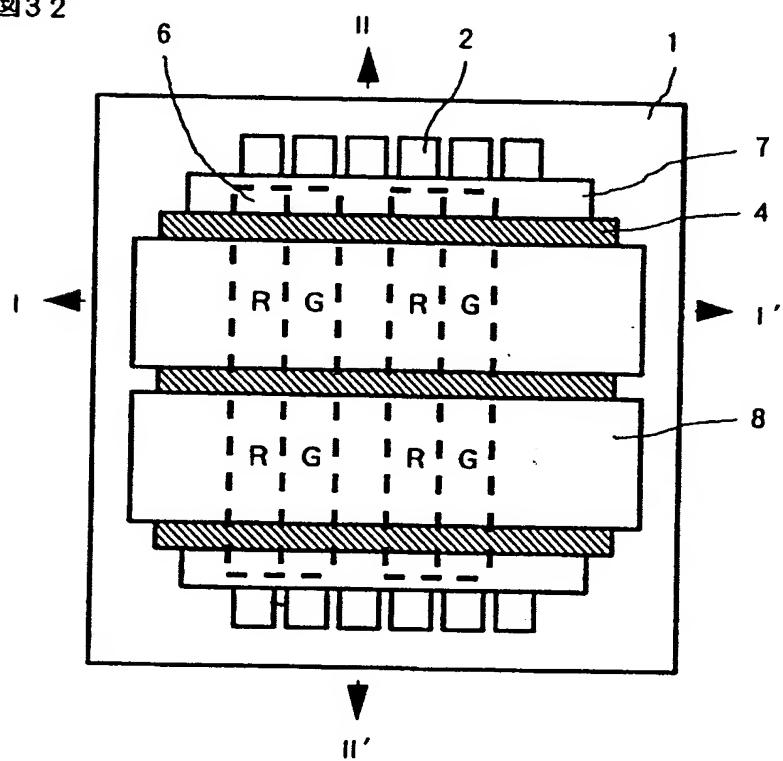


図33

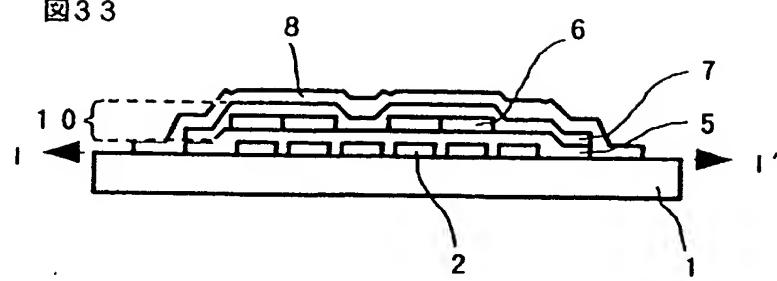


図34

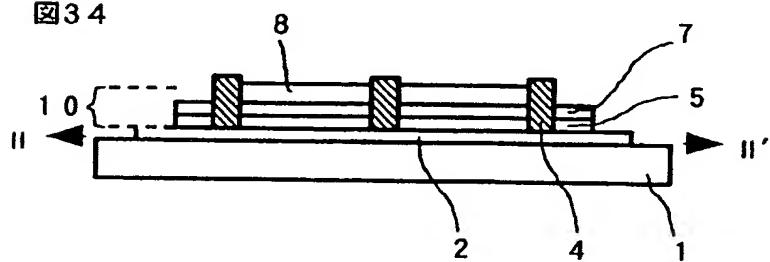


図35

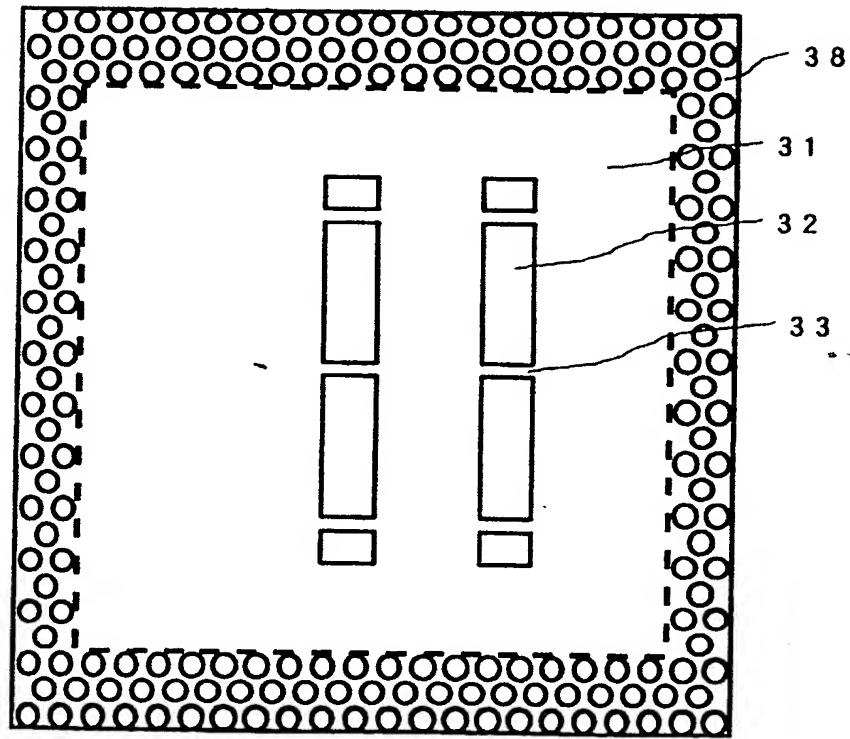
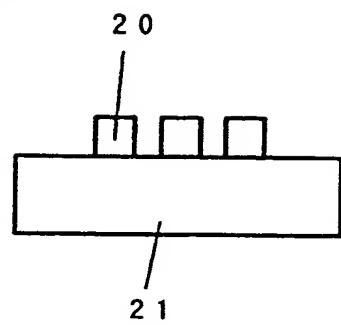
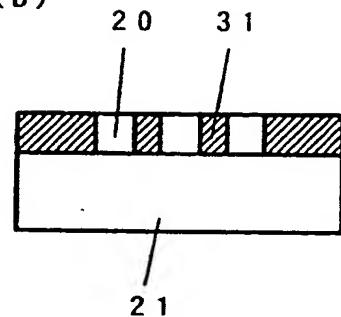


図3.6

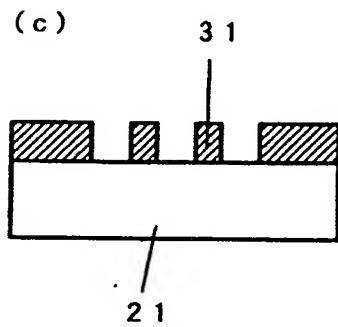
(a)



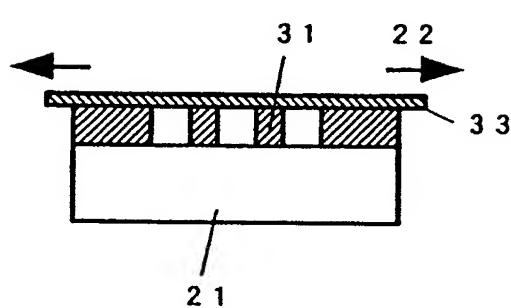
(b)



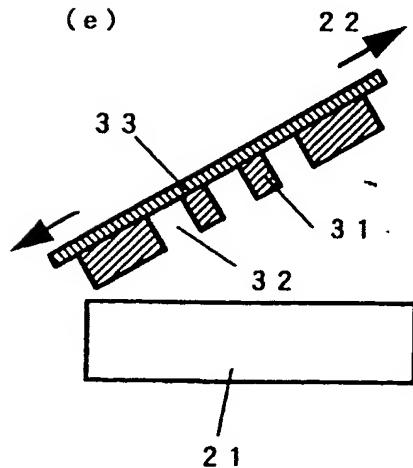
(c)



(d)



(e)



(f)

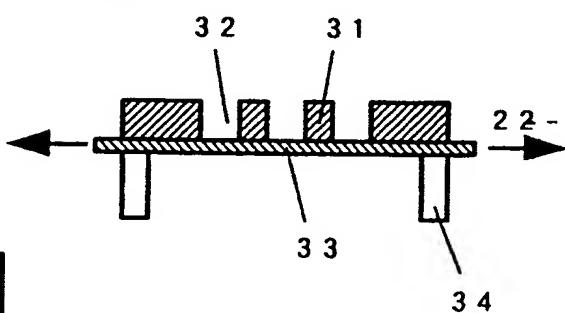
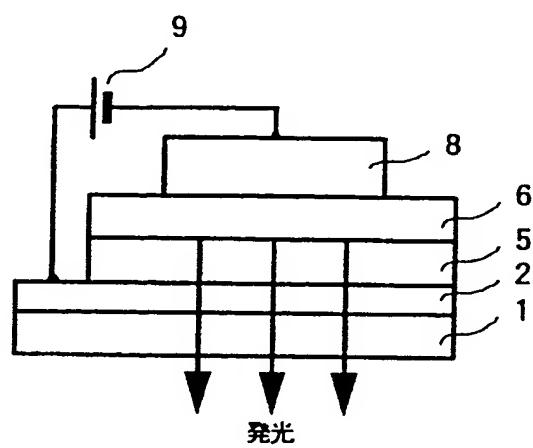


図37



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP97/03721

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int. Cl⁶ H05B33/10, H05B33/14, H05B33/22

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int. Cl⁶ H05B33/10, H05B33/14, H05B33/22

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1926 - 1997
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971 - 1997
Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994 - 1997

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP, 6+124781, A (Futaba Corp.), May 6, 1994 (06. 05. 94), Page 2, right column, lines 10 to 28 (Family: none)	1, 2
Y	JP, 8-202287, A (Futaba Corp.), August 9, 1996 (09. 08. 96), Page 5, left column, lines 35 to 47 (Family: none)	1, 2
Y	JP, 63-276035, A (Nikon Corp.), November 14, 1988 (14. 11. 88), Page 2, lower right column, lines 3 to 7 (Family: none)	1, 2

Further documents are listed in the continuation of Box C. See patent family annex.

- * Special categories of cited documents:
- "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- "B" earlier document but published on or after the international filing date
- "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed
- "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
- "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
- "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
- "&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search January 6, 1998 (06. 01. 98)	Date of mailing of the international search report January 13, 1998 (13. 01. 98)
Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office Facsimile No.	Authorized officer Telephone No.

国際調査報告

国際出願番号 PCT/JP97/03721

A. 発明の属する分野の分類(国際特許分類(IPC))

Int. Cl¹. H 05 B 33/10
 H 05 B 33/14
 H 05 B 33/22

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料(国際特許分類(IPC))

Int. Cl¹. H 05 B 33/10
 H 05 B 33/14
 H 05 B 33/22

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1926-1997
 日本国公開実用新案公報 1971-1997
 日本国登録実用新案公報 1994-1997

国際調査で使用した電子データベース(データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y	J P. 6-124781, A (双葉電子工業株式会社) 6. 5月. 1994 (06. 05. 94), 第2頁, 右欄, 第10-28行 (ファミリーなし)	1, 2
Y	J P. 8-202287, A (双葉電子工業株式会社) 9. 8月. 1996 (09. 08. 96), 第5頁, 左欄, 第35-47行 (ファミリーなし)	1, 2
Y	J P. 63-276035, A (株式会社ニコン) 14. 11月. 1988 (14. 11. 88), 第2頁, 右下欄, 第3-7行 (ファミリーなし)	1, 2

 C欄の書きにも文献が列挙されている。 パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」先行文献ではあるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献(理由を付す)

「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

06. 01. 98

国際調査報告の発送日

13 January 1998 (13.01.98)

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号 100-0

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官(権限のある職員)

山岸 利治 印

3 K 7910

電話番号 03-3581-1101 内線 3333